

Série A, N° 2.546
N° D'ORDRE
3.418

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Emile PERNOUX

*Attaché de recherches du Centre National de la Recherche Scientifique
au Laboratoire d'Optique Electronique de la Faculté des Sciences de Lyon*

PREMIÈRE THÈSE. — PHÉNOMÈNES DE DIFFRACTION ET D'INTER-
FÉRENCES ÉLECTRONIQUES PRODUITS PAR
DES CRISTAUX MINCES.

DEUXIÈME THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 17 Avril 1953 devant la Commission d'Examen

MM. L. DE BROGLIE	Président.
G. CHAUDRON	} Examineurs.
J. BÉNARD	

LYON
BOSC Frères
Imprimeurs-Editeurs
42, quai Gailleton, 42

1953

Série A, N° 2.546
N° D'ORDRE
3.418

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR
LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES
PAR

Emile PERNOUX

*Attaché de recherches du Centre National de la Recherche Scientifique
au Laboratoire d'Optique Electronique de la Faculté des Sciences de Lyon*

PREMIÈRE THÈSE. — PHÉNOMÈNES DE DIFFRACTION ET D'INTER-
FÉRENCES ÉLECTRONIQUES PRODUITS PAR
DES CRISTAUX MINCES.

DEUXIÈME THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 17 Avril 1953 devant la Commission d'Examen

MM. L. DE BROGLIE	Président.
G. CHAUDRON	} Examineurs.
J. BÉNARD	

LYON
BOSC Frères
Imprimeurs-Éditeurs
42, quai Gailleton, 42

—
1953



Doyen ...M. A.CHATELET

PROFESSEURS.

G. Julia	T Analyse & algèbre sup.	Kastler	T Physique
A. Denjoy	T Théorie des fonctions	Chatelet	T Arithmétique et théorie des nombres
L. Lutaud	T Géographie physique & géologie dynamique	Ephrussi	T Génétique
E. Darmois	T Enseignement de physique	Wurmser	T Biologie phys.-chimique
R. Lévy	T Physiologie comparée	Bauer	T Chimie- physique
Foch	T Mécanique phys.& exp.	Rivière	T Géologie (P.C.B)
Pauthenier	T Electrotechnique générale	Gautheret	T Biologie végétale (P.C.B)
De Broglie	T Théories physiques	Lucas	T Physique
Job	T Chimie générale	A. Thomas	T Evolution des êtres organisés
Prenant	T Anatomie et histologie comparées	Arnulf	T Optique appliquée
Combes	T Physiologie végétale	M. Morand	T Physique
Garnier	T Géométrie supérieure	Soleillet	T Physique
Pérès	T Méca. des fluides & appl.	Fortier	T Méca. exp. des fluides
Laugier	T Physiologie générale	Danjon	T Astronomie
Toussaint	T Technique Aéronautique	Fromageot	T Chimie biologique
M. Curie	T Physique (P.C.B)	Laporte	T Phys.gén.& radioactivité
G. Ribaud	T Hautes températures	Janet	T Mathématiques générales
Chazy	T Méca. analyt.& céleste	Petit	T Biologie maritime
Croze	T Phys. théorique & céleste	Queney	T Météorologie et dynamique atmosphérique
Dupont	T Théories chimiques	Gallien	T Biologie animale (P.C.B)
Valiron	T Calcul diff.& intégral	Eichhorn	T Biologie végétale (P.C.B)
Barrabé	T Géologie struc.& appl.	De Cugnac	T Biologie végétale (P.C.B)
G. Darmois	T Calcul des probabilités & Physique mathématique	Mle Cauchois	T Chimie-Physique
J. Bourcart	T Géographie physique & géologie dynamique	Thellier	T Physique du globe
Aubel	T Chimie biologique	Audubert	T Electrochimie
Mme J. Curie	T Phys.gén.& radioactivité	L'Héritier	T Génétique
Plantefol	T Botanique	Grivet	T Radio Electricité
Cabannes	T Recherches physiques	Poncin	T Mécanique des fluides
Grassé	T Evolution des êtres organisés	Thiry	T Mécanique appliquée
Prévost	T Chimie organique	Dubreil	T Mathématiques générales
Bouligand	T Application de l'analyse à la géométrie	Quelet	T Chimie (P.C.B)
Chaudron	T Chimie appliquée	Cagniard	T Géophysique appliquée
Wyart	T Minéralogie	Champetier	T Chimie appliquée
Teissier	T Zoologie	Cuvillier	T Géologie struc.& appl.
Mangenot	T Biologie végétale	Jung	T Pétrographie
P Auger	T Phys.quant.& relativité	Trillat	T Physique (P.C.B)
Monnier	T Physiologie générale	Wiemann	T Chimie (P.C.B)
Piveteau	T Géologie	Jacquinet	T Physique (P.C.B)
Rocard	T Physique	Vassy	T Phys. de l'atmosphère
H. Cartan	T Mathématiques (E.N.S)	Destouches	T Théories physiques
Schaeffer	T Physiologie des fonctions	M. Pruvost	T Géologie
Laffitte	T Chimie générale	Amiel	T Chimie (P.C.B)
Favard	T Mécanique générale	Hocart	T Minéralogie
Coulomb	T Physique du globe	Macheboeuf	T Microbiologie
Mle Cousin	T Biologie animale (P.C.B)	J.P. Mathieu	T Physique (P.C.B)
Chretien	T Chimie minérale	Couteaux	T Biologie animale (P.C.B)
P. Drach	T Zoologie	May	T Biologie animale (P.C.B)
		Choquet	T Calcul différentiel
		Feldmann	T Biologie (P.C.B)
		Guinier	T Physique (P.C.B)
		Jost	T Biologie (P.C.B)

Secrétaire.: Ch. Monier

Au début de cet exposé, je tiens à remercier les Maîtres qui m'ont fait l'honneur de présider et de constituer ce jury de thèse :

M. le Professeur Louis de BROGLIE,
M. le Professeur Georges CHAUDRON,
M. le Professeur J. Jacques TRILLAT,

qu'ils trouvent ici l'expression de mes sentiments profondément respectueux et reconnaissants.

Je remercie également M. le Professeur Jacques BENARD qui a bien voulu à la dernière minute, remplacer M. le Professeur TRILLAT, indisposé.

Ce travail a été réalisé au Laboratoire d'Optique Electronique de la Faculté des Sciences de Lyon sous la direction du Professeur René BERNARD qui en a suivi pas à pas le développement. Critiquant mes expériences, en suggérant d'autres, discutant mes interprétations, en proposant de nouvelles, il n'a ménagé ni les reproches, ni les encouragements et je ne trouve pas de mots pour traduire ici dans la forme simple qu'il affectionne, la reconnaissance que je lui dois, tant pour ce qu'il m'a appris, que pour l'ambiance dynamique et cordiale qu'il a su créer autour de lui.

Je n'oublierai pas non plus les nombreux services que m'ont rendus mes camarades de laboratoire et je suis heureux de pouvoir rendre hommage à leur bel esprit d'équipe.

J'ai poursuivi ce travail grâce à l'appui financier du Centre National de la Recherche Scientifique que je remercie en la personne de son directeur M. le Professeur G. DUPOUY et de mon parrain de recherche M. le Professeur J.-J. TRILLAT.

=====

- PREMIERE THESE -
-----++++-----

PHENOMENES DE DIFFRACTION ET D'INTERFERENCES ELECTRONIQUES
PRODUITS PAR DES CRISTAUX MINCES



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552418_0020

Outre la préparation des objets à examiner, le microscope électronique pose encore, avec l'interprétation des images, un problème fort délicat. En effet, les substances étudiées, si elles ne sont pas exceptionnellement stables, peuvent se modifier en cours d'examen. Sous l'influence du vide, du bombardement électronique ou de l'effet thermique, elles peuvent fondre, se sublimer, se transformer chimiquement, changer de forme et de structure cristalline.

Dans le cas particulier de cristaux minces, la diffraction sur les plans réticulaires intervient encore pour changer la structure de l'image. Supposons par exemple (fig. 1) que l'objet soit un cristal mince AB dont les plans réticulaires d'équidistance d sont normaux à la face AB. Ces plans font avec le faisceau incident un certain angle θ variable avec l'orientation du cristal et qui conditionne la transparence de celui-ci. En particulier, si la relation de Bragg $2d \cdot \sin\theta = n\lambda$ se trouve vérifiée, le cristal devient opaque aux électrons d'incidence θ qu'il diffracte régulièrement suivant l'angle 2θ (fig. 1).

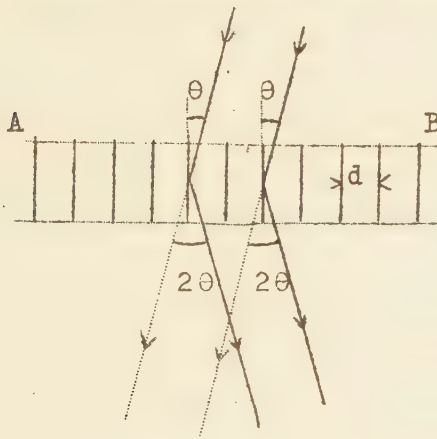


fig. 1

Avec une tension d'accélération de 60 KV, la longueur d'onde associée à l'électron vaut : $\lambda = 0,05 \text{ \AA}$.

$$\text{Si } d = 2,5 \text{ \AA} ; \quad \sin\theta = n \frac{0,05}{5} = n \frac{1}{100}$$

Pour les premiers ordres n est petit, on peut alors confondre $\sin\theta$ et θ qui vaut quelques 10^{-2} radians. Cet angle est faible, mais il est déjà suffisant pour que le faisceau diffracté ne puisse pénétrer dans l'objectif dont l'ouverture est inférieure à quelques 10^{-3} radians. Ces électrons diffractés arrêtés par le diaphragme, ne concourent donc pas à la formation de l'image et les régions de l'objet dont ils sont issus apparaissent opaques. Si le cristal est gauche,

ce qui arrive fréquemment, les zones d'incidence θ correspondent sur l'image à des régions sombres, comme si l'objet était localement plus opaque, plus absorbant. (fig. 2)

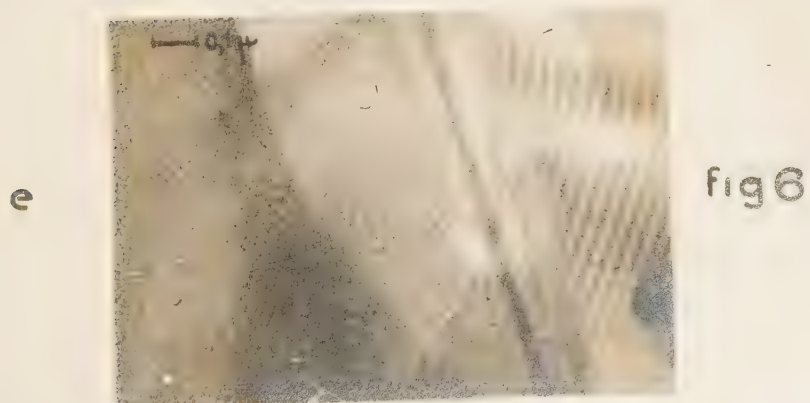
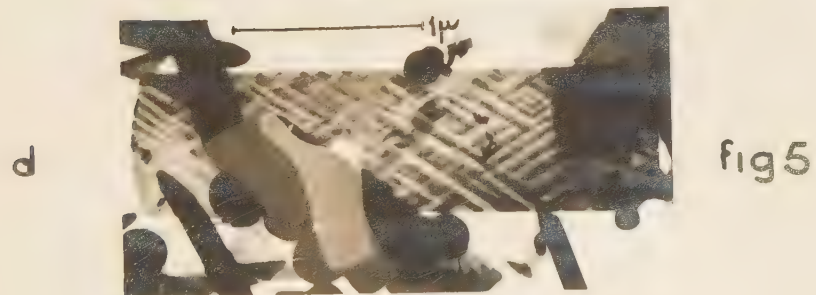
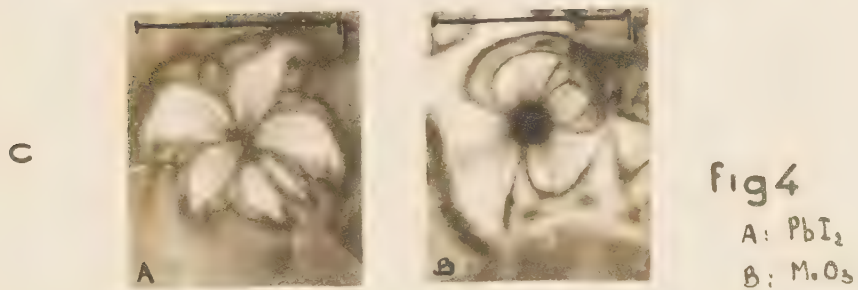
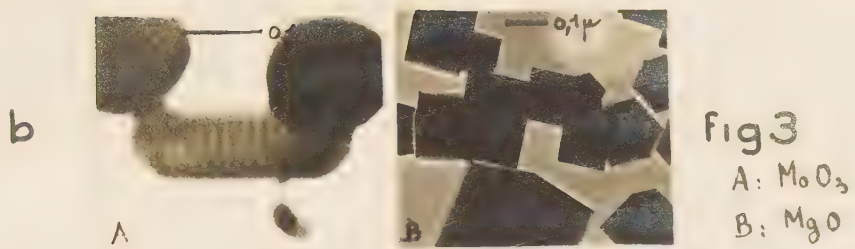
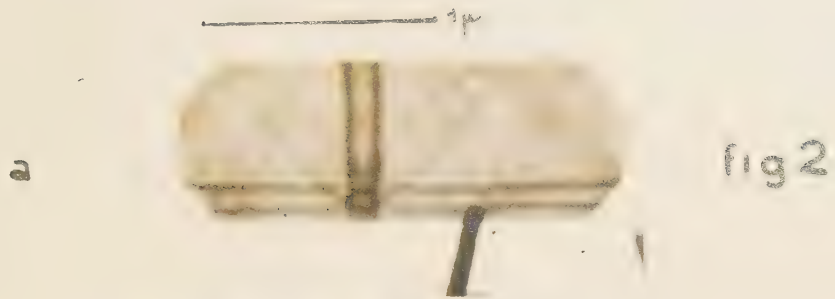
Ce phénomène fut remarqué dès le début de la microscopie électronique; ainsi, Von Ardenne le signale dès 1940 ⁽¹⁾. Il montre que l'aspect des images est très sensible à de faibles variations d'inclinaison de l'objet et que des changements de 10^{-3} radians suffisent pour que ses cristaux d'oxyde de chrome apparaissent opaques ou transparents (ou vice versa), c'est-à-dire que leurs images passent du sombre au clair. Il en conclut "qu'il s'agit là d'un phénomène encore inconnu, rendu visible grâce à la très grande sensibilité du microscope électronique à tout changement d'incidence". Peu après, Hillier et Baker ⁽²⁾ observent les paires de bandes claires et sombres associées aux images de lamelles cristallines, puis Seemann ⁽³⁾ découvre en 1943 les bandes sombres et mobiles des cristaux d'oxyde molybdique. Il n'en donne aucune interprétation mais formule diverses hypothèses : effets électriques de surface, tension de cristallisation, effet thermique.

En fait, c'est Böersch ⁽⁴⁾ qui fournit en 1941-43 la première interprétation valable de ces phénomènes. Son travail réalisé avec le microscope à ombre, en apparence assez différent du microscope électronique actuel, est malheureusement trop peu connu, si bien qu'on trouve encore les franges de l'oxyde molybdique présentées dans la littérature récente comme un phénomène nouveau inexpliqué (Takagi, 1951) ⁽⁵⁾.

On a donné parfois à ces figures dont la densité n'est pas en rapport direct avec l'opacité de l'objet, le nom de pseudo-structures. Dans les années qui suivirent la guerre, le développement rapide de la microscopie électronique amena les utilisateurs à en découvrir de nouvelles ⁽⁶⁾ ⁽⁷⁾ ⁽⁸⁾ ⁽⁹⁾, si bien qu'actuellement tous les aspects connus du phénomène constituent un ensemble aussi complexe que varié.

Préalablement à toute étude générale, nous nous sommes donc astreints à classer les pseudo-structures électroniques en un nombre restreint de groupes cohérents. Après un examen attentif des faits expérimentaux connus pour divers cristaux : mica, iodure de plomb,

PLANCHE I



oxyde molybdique, magnésie, acide tungstique, nous avons finalement retenu 5 classes distinctes :

- a) les franges sinueuses et très souvent mobiles, sans forme géométrique définie, sans liaison très nette avec la structure du cristal (fig. 2, pl. I),
- b) les franges fixes équidistantes, liées à la géométrie du cristal, (fig. 3, pl. I),
- c) les franges ou figures à centre de symétrie en forme de rosaces évoluant avec la durée du bombardement électronique. Leur symétrie est conditionnée par celle du réseau cristallin (fig. 4, pl. I),
- d) les franges en lame de parquet ou en arête de poisson dont l'orientation est liée au réseau cristallin. Elles sont très fugaces. (fig. 5, pl. I),
- e) les franges parallèles équidistantes obtenues par superposition de deux cristaux et rappelant les franges des lames minces (fig. 6 pl. I).

Les figures du premier type a) sont les plus faciles à observer, ce sont celles dont nous avons parlé plus haut et que nous étudierons plus en détail au chapitre II.

Les franges du second groupe b) ont été signalées par Heidenreich ⁽⁶⁾ puis Kinder ⁽⁷⁾ sur les images de cristaux cubiques de magnésie (fig. 2, pl. I). Elles sont rectilignes, équidistantes, alternativement sombres et brillantes et s'observent sur des cristaux orientés

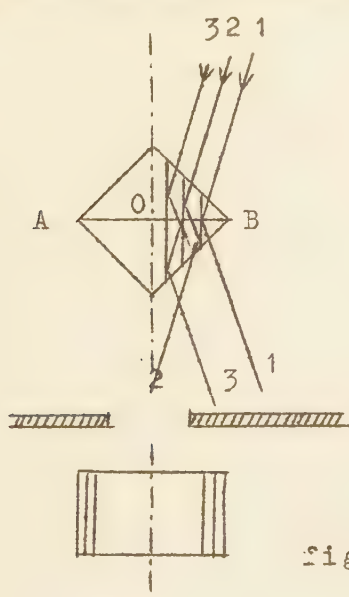


fig. 7

comme l'indique la figure 7. Heidenreich en donne l'interprétation géométrique suivante : certains plans réticulaires donnent lieu à des diffractions de Bragg successives, la première dévie bien le faisceau incident mais la seconde lui redonne sa direction primitive et ainsi de suite. D'une façon générale, un nombre impair de réflexions conduit à un faisceau dévié de 2θ , tandis qu'un nombre pair ne donne aucune déviation.

Or, le nombre de réflexions successives est fonction de l'épaisseur traversée qui, pour un cristal placé suivant la fig. 7 croît régulièrement de B à 0 et de A à 0. Si les diaphragmes des lentilles interceptent les faisceaux déviés tels que 1 et 3, il en résulte une succession régulière de franges équidistantes, parallèles entre elles et normales en A et B au plan de la figure. Un calcul plus général faisant appel à la théorie dynamique de l'électron a été développé par Heidenreich et Sturkey (¹⁰); il conduit au même résultat. On peut donc considérer ce cas, rendu particulièrement simple par la forme géométrique du cristal, comme complètement élucidé. Pour clore avec ce sujet, nous rappelons simplement nos observations de franges analogues produites par un microcristal d'oxyde molybdique (¹¹) (fig. 3, pl. I).

Nous étudierons plus longuement les franges c) à centre de symétrie que nous avons observées pour la première fois avec des cristaux d'iodure de plomb. Nous discuterons de leur origine et de leur interprétation au chapitre III.

L'étude des franges d) en lames de parquet que nous avons découvertes sur les cristaux d'oxyde molybdique (⁹) feront l'objet du chapitre IV.

Enfin dans le chapitre V, nous montrerons que les franges du dernier groupe e) sont en réalité des franges d'interférences électro-niques obtenues par la superposition de deux faisceaux cohérents.

- CHAPITRE I -

- Généralités et Techniques expérimentales -

En microscopie électronique, l'image d'un objet résulte de la concentration sur l'écran ou sur l'émulsion photographique des électrons qui traversent la préparation sans perte de vitesse appréciable et sans déviation importante. L'image ainsi formée par un pinceau étroit d'électrons monocinétiques possède évidemment une haute définition. Si l'objet est de nature cristalline certaines de ses parties peuvent se présenter sous une incidence de Bragg, et, comme nous l'avons déjà exposé, les électrons tombant sur de tels domaines sont diffractés et déviés d'un angle 2θ de quelques 10^{-2} radians. Une fraction seulement est diffractée élastiquement et peut atteindre la zone marginale de l'objectif. Elle converge ainsi sur l'écran en donnant du domaine correspondant une image peu intense et médiocrement définie qui se superpose à la précédente. Il n'en reste pas moins qu'en dépit de cette superposition une partie importante des électrons diffractés sous l'angle de Bragg est perdue pour l'image qui présente de ce fait des zones sombres (fig. 2, pl. I).

On peut imaginer plusieurs dispositifs pour mettre en évidence ces deux composantes de l'image définitive. Le premier en date et le plus

simple est le microscope à ombre, utilisé par Böersch (4) pour interpréter les images fournies par le mica.

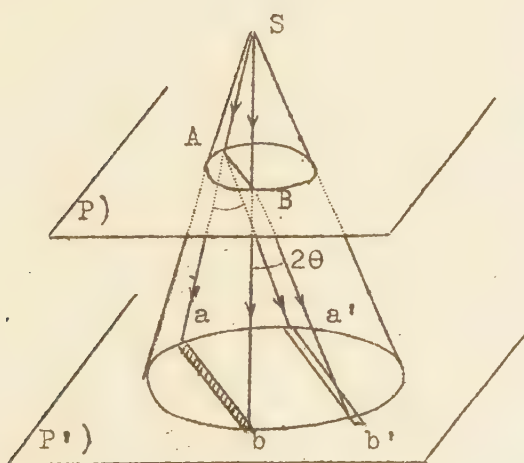


fig. 8

Principe du microscope à ombre.-

Dans ce dispositif une source ponctuelle S donne une image d'ombre d'un objet cristallin situé dans le plan P (fig. 8). Au niveau de la zone AB orientée suivant une incidence de Bragg le faisceau direct est dévié de l'angle 2θ et on retrouve en $a'b'$ la trace des électrons absents en ab .

Il suffit de mesurer la distance entre ab et $a'b'$ pour déterminer l'angle 2θ et en déduire l'orientation de la partie AB du cristal par rapport au faisceau électronique. Böersch prouve ainsi que les franges sombres produites par le mica clivé sont dues à la diffraction des électrons par les différents plans réticulaires normaux (ou presque normaux) au plan de clivage P (fig. 1). Ce dispositif simple est particulièrement intéressant parce qu'il permet d'observer en même temps la trace sombre ab et l'image complémentaire claire $a'b'$ donnée par les électrons déviés sous l'angle 2θ . Il présente par contre l'inconvénient de fournir une image faiblement agrandie et de pouvoir séparateur médiocre, limitant ainsi l'emploi du procédé à de gros cristaux souvent irréalisables.

Dispositif de Rang et Schluge ⁽¹²⁾ : Un pinceau électronique étroit tombe sur la préparation et donne sur l'écran E le diagramme de points du monocristal étudié. Un diaphragme mobile percé d'une ouverture circulaire D permet d'isoler un des faisceaux diffractés en arrêtant tous les autres (fig. 9). Ce pinceau tra-

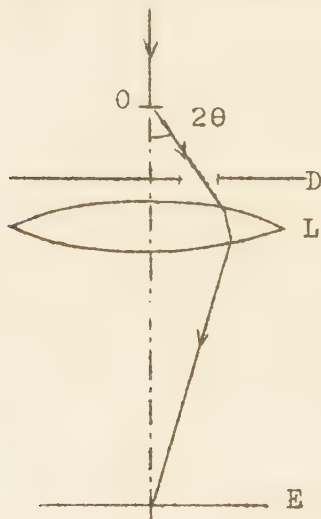


fig. 9

verse alors la lentille électrostatique L qui le focalise sur E. L'image obtenue, claire sur fond sombre, est donc formée uniquement par des rayons diffractés sous l'angle de Bragg 2θ . Elle correspond aux régions de l'objet cristallin pour lesquelles la condition de Bragg (angle θ entre une série de plans et le faisceau incident tel que $2d \cdot \sin\theta = n\lambda$) se trouve remplie. Le déplacement du diaphragme permet ainsi d'analyser

successivement tous les faisceaux diffractés par le cristal et de reconstituer de proche en proche sa topographie exacte. La méthode a été brillamment appliquée par Rang aux franges de diffraction stables du mica ⁽¹³⁾, elle présente toutefois l'inconvénient de ne pas convenir à l'étude de phénomènes fugaces dans lesquels certaines zones du cristal changent d'orientation en l'espace d'une ou 2 secondes.

difficultés techniques, il ne put faire cet étalonnage et se contenta de l'exploitation qualitative du phénomène.

Avec le microscope (Trüb-Taüber & Cie) que nous utilisons, il nous est possible au contraire de mesurer d'une façon précise le déplacement vertical de l'objet et par suite, de tirer de la méthode de défocalisation des résultats quantitatifs. Entre le déplacement x de l'objet, la distance l qui sépare a de a_1, b_1 et le grandissement G de l'instrument, nous avons la relation :

$$2\theta = l/G. 1/x$$

La loi de Bragg s'écrit : $2d\theta = n\lambda$ d'où $d = n\lambda. Gx/l$
équation qui permet de calculer l'équidistance d des plans réticulaires responsables d'une frange donnée. On trouve aux chapitres II p. 13 et III p. 27 des exemples d'application de cette méthode.

La méthode permet en outre de tracer sur l'image la direction des plans diffractants. En effet, au cours d'une défocalisation progressive, l'image complémentaire s'éloigne de sa position initiale suivant une direction normale à celle des plans diffractants, de façon qu'après une défocalisation totale, elle constitue un des spots du diagramme de points. Pendant ce temps l'image directe du cristal devient floue, se concentre et forme pour finir le spot central. Cette défocalisation continue n'est pas réalisable par le simple déplacement de l'objet, mais elle peut l'être facilement en réduisant jusqu'à zéro la puissance de l'objectif. Avec un système magnétique, on obtient ce résultat en supprimant progressivement le courant d'alimentation de la lentille; avec un dispositif électrostatique on atteint le même but par l'emploi d'un potentiomètre haute tension, mais dans les deux cas, le passage continu de l'image au diagramme de diffraction nécessite des conditions d'ouverture rarement réalisées. Il n'est donc pas possible pratiquement de suivre le phénomène de bout en bout, mais cela n'est pas non plus nécessaire car tous les renseignements que la méthode peut donner se déduisent aussi de l'étude d'une défocalisation limitée, à condition qu'on possède par ailleurs le diagramme de diffraction. Autrement dit, l'étude d'une image faiblement défocalisée fournit tous les renseignements désirés : étude des domaines produisant les faisceaux diffractés, angles formés par ceux-ci avec le faisceau incident, distance réticulaire des plans diffractants,

orientation approchée de ces plans par rapport aux détails de l'image. Pourtant ce dernier résultat sera fourni plus commodément et avec plus de précision par la technique suivante.

Méthode permettant de repérer sur l'image l'orientation des plans réticulaires : On sait que le diagramme électronique par transmission d'un monocristal lamellaire est un ensemble de points qui s'alignent suivant le réseau réciproque des plans cristallins parallèles à la lame traversée. Pour repérer l'orientation des plans en question par rapport aux contours du cristal, il suffit donc de superposer diagramme et image sans déplacement relatif. Ce résultat s'obtient en formant, sans déplacer ni la préparation ni la surface sensible, l'image du cristal et son diagramme donné par un pinceau électronique étroit. L'objectif utilisé est du type électrostatique, le projectif du type magnétique escamotable. L'observation d'un cristal tabulaire assez gros, quelques dizaines de microns, peut donc se faire avec l'objectif seul ($G = 200$) et sans rotation de l'image, si bien que le diagramme de points qu'on lui superpose se trouve immédiatement orienté.

Pour les cristaux plus petits, on mesure au préalable la rotation de l'image introduite par le projectif aux divers grossissements utilisés, 3.600, 7.000, 12.000 et l'on trouve que, pour une tension accélératrice de 40 kV, les angles de rotation sont respectivement 217° , 236° et 260° . Ces valeurs étant connues, pour l'étude d'un petit cristal, on se contente de superposer son image au grossissement 12.000 et son diagramme électronique préalablement orienté en le faisant tourner de l'angle convenable (fig. 11, pl. II).

Cette méthode, dont l'unique difficulté d'application réside dans la formation sur le cristal d'un spot électronique très petit (quelques microns), nous a permis de déchiffrer les franges de diffraction les plus complexes (chapitre III, p. 17).

Franges diffuses, sinueuses et mobiles

Ces figures sont celles que nous avons rapidement décrites dans notre introduction (fig. 2, pl. I). Elles sont très faciles à observer sur les cristaux d'oxyde molybdique qui se présentent sous la forme de lamelles remarquablement minces et régulières. On en obtient de bonnes préparations en recueillant sur un film-support les fumées qui se dégagent dans la combustion du molybdène à la température de l'arc électrique. Ces préparations, faciles à obtenir, sont souvent utilisées comme test dans les opérations de réglage d'un microscope électronique; elles donnent en effet des images bien contrastées, à contours géométriques définis. C'est pour cette raison que l'oxyde molybdique a été si souvent observé et que ses franges ont été aussi abondamment décrites ⁽³⁾ ⁽⁴⁾ ⁽⁵⁾.

Description.— Elles se présentent sous la forme de bandes sombres qui apparaissent sur une préparation fraîche au début d'une observation, et qui se déplacent ensuite plus ou moins rapidement. Elles se forment quelquefois à l'extrémité d'un cristal, le traversent sur toute sa longueur et disparaissent à l'autre extrémité. Les vitesses de déplacement peuvent être très différentes d'un cristal à l'autre. Quand le phénomène est suffisamment lent, il est possible de prendre des photographies successives, qui montrent bien cette évolution (fig. 12 et 13, pl. II). En général, le phénomène se calme peu à peu et les franges deviennent presque stables, mais il est rare qu'elles disparaissent totalement. Sur les petits cristaux (1 μ), elles sont en gros parallèles aux côtés du cristal (fig. 12, pl. II) tandis que leur contour devient compliqué et quelconque sur des cristaux plus étendus (10 μ) (fig. 14, pl. II). Précisons encore qu'elles sont généralement doubles, ce qui est très net sur les figures précédemment citées.

Des franges semblables ont été observées avec l'iodure de plomb, le mica et l'acide tungstique, mais elles sont mobiles pour l'anhydride molybdique et l'iodure de plomb, tandis qu'elles restent bien stables sur le mica et l'acide tungstique.

PLANCHE II

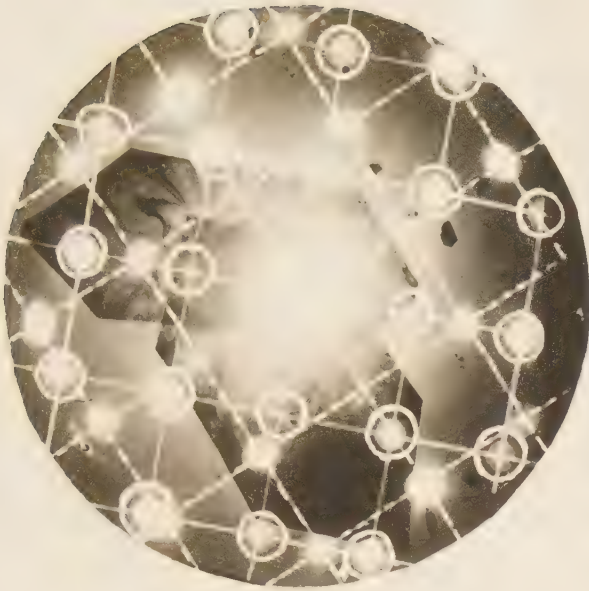


fig11



fig12_a



fig12_b

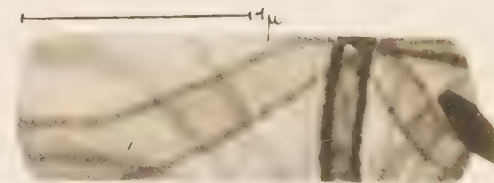


fig13_a



fig13_b

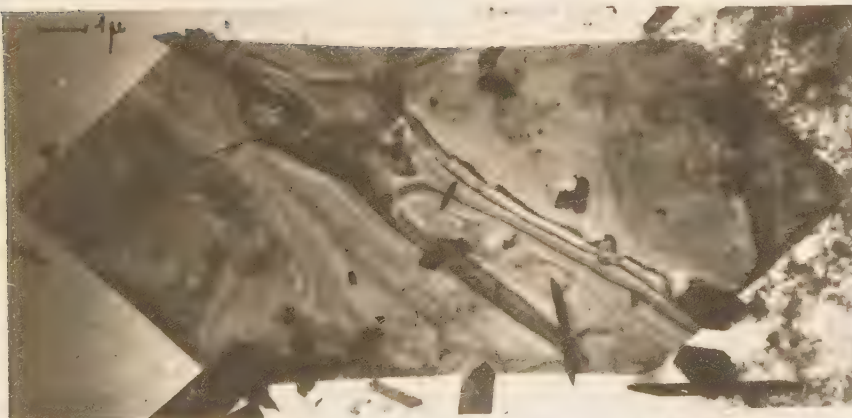


fig14_a



fig14_b

Interprétation. - Nous avons déjà indiqué (chapitre I, p. 5) comment Børsch expliquait les franges de ce type observées sur le mica, par la diffraction du faisceau électronique incident sur certains plans cristallins. Il proposa d'étendre cette interprétation au cas de l'oxyde molybdique, mais sans pouvoir fournir de confirmation expérimentale pour la simple raison, que son microscope à ombre ne lui permettait pas d'observer des cristaux aussi petits.

La question n'était donc pas complètement tranchée et certains hésitèrent encore sur l'interprétation à donner aux franges de MoO_3 . Ainsi, König ⁽¹⁵⁾ crut un instant voir dans ce phénomène l'influence de charges électrostatiques superficielles inégalement réparties et qui détourneraient les électrons de certaines régions du cristal rendues apparemment plus opaques. Bernard et Pernoux ont montré ⁽¹⁶⁾ que cette hypothèse n'est pas soutenable. Il suffit pour cela de métalliser les préparations par vaporisation sous vide et de conférer ainsi aux cristaux une conductivité superficielle qui empêche la localisation des charges électriques. Dans l'hypothèse de König, ces préparations ne devraient plus montrer de franges, or il n'en est rien, le phénomène reste inchangé. Il fallait donc revenir à l'hypothèse des électrons diffractés par une distorsion du cristal.

L'analogie avec les franges stables du mica est évidemment suffisante pour qu'on étende sans peine aux franges mobiles de l'oxyde molybdique l'interprétation de Børsch, mais il faut au préalable connaître les éléments caractéristiques de ces cristaux tabulaires. On les trouve facilement en appliquant la méthode consistant à superposer l'image et le diagramme de points du monocristal (chapitre I, p. 9 et fig. 11, pl. II). On vérifie ainsi que leur grande face est le plan 010 d'un système orthorhombique de paramètres :

$a = 3,66 \text{ \AA}$; $b = 13,94 \text{ \AA}$; $c = 3,92 \text{ \AA}$ (fig. 15 et 16)

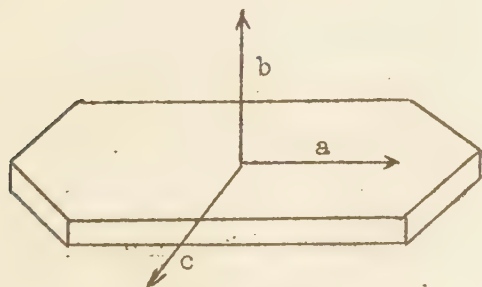


fig. 15

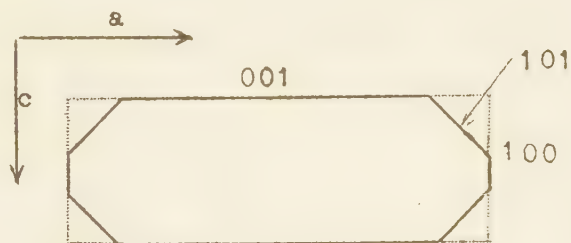


fig. 16

Ils sont généralement allongés dans la direction a et les troncatu-
res se font suivant le plan 101 (fig. 16). Ces résultats sont en ac-
cord avec les conclusions de Nora Wooster (¹⁷) déduites de l'examen
aux rayons X de cristaux beaucoup plus gros ($2 \times 1 \times 0,05$ mm). Toutes
proportions gardées nos cristaux de 2 à 5 μ auraient une épaisseur
suivant b comprise entre 50 et 200 Å, en bon accord avec leur trans-
parence aux électrons.

Essayons avec ces données d'interpréter les images des fig. 12 et
13, pl. II. Supposons que le cristal (fig. 12a) soit courbé suivant
une surface cylindrique dont la génératrice serait normale au plan de
la figure 17. Les plans réticulaires 100, normaux à la surface, for-
ment un éventail et présentent 2 fois, de part et d'autre de C, au
voisinage de A et B, l'angle θ requis pour la diffraction de Bragg.
L'aspect du cristal fig. 12a, pl. II s'explique donc simplement par
le fait que sur la surface cylindrique du cristal les bandes sombres
sont celles où les plans 100 font l'angle $+\theta$ ou $-\theta$ avec le faisceau
incident. Dans le cas présent l'axe du cylindre est parallèle aux

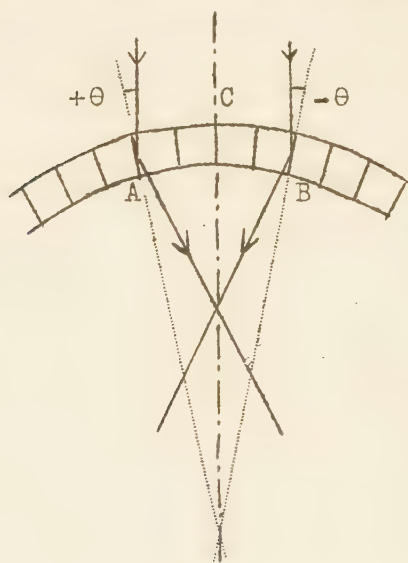


fig. 17

franges et perpendiculaire au plan
de la figure 17.

Quelques instants plus tard, l'as-
pect du cristal s'est modifié (fig.
12b, pl. II). Deux nouvelles franges
sont apparues à 90° des premières
qui se sont elles-mêmes déplacées.
Elles s'expliquent de même par une
courbure du cristal mais cette fois-
ci les plans diffractants sont les
plans 001.

Comme on le sait, le pouvoir réflec-
teur de ces deux séries de plans est

particulièrement élevé à cause de leur forte densité électronique, ce
qui explique la forte intensité des franges auxquelles ils donnent
naissance. D'autres plans peuvent également produire des franges (101
par exemple) mais elles sont moins intenses. Sur les figures 12, pl.
II, elles sont approximativement orientées suivant les troncatures du
cristal.

L'interprétation qualitative qui précède, trouve sa confirmation quantitative dans l'application de notre méthode de défocalisation décrite au chapitre I. Les photos 14a et 14b, pl. II montrent l'image nette et l'image défocalisée du même cristal. Sur la 2ème les franges complémentaires apparaissent nettement fournissant ainsi la preuve de l'existence d'un faisceau diffracté. Il est d'autre part facile de constater (fig. 14b, pl. II) que le déplacement des images complémentaires s'est effectué parallèlement aux grand et petit côtés du cristal, c'est-à-dire que les plans diffractants normaux à ces déplacements sont bien les plans 100 et 001. D'après la même figure, le déplacement moyen suivant le grand côté du cristal est de 2 μ . En appliquant la relation donnée au chapitre I $d = n\lambda Gx/l$ dans laquelle nous faisons $x = 70 \mu$ (déplacement vertical de l'objet) et $l/G = 2 \mu$ nous retrouvons la distance réticulaire des plans 100 sous la forme

$$d = n. 0,05. 70/2$$

$$d = n. 1,90$$

comme celle-ci est égale à $d = 3,66 \text{ \AA}$, c'est que $n = 2$. Or les diagrammes de points montrent précisément que les seconds ordres de diffraction sont aussi les plus intenses. Nous pouvons donc conclure que les franges sombres dont l'image complémentaire se déplace suivant a, sont dues aux plans diffractants 100, l'angle de Bragg correspondant étant donné par :

$$2d\theta = 2\lambda \quad \text{d'où} \quad \theta = \lambda/d$$

$$\theta = \frac{0,055}{3,66} = 15. 10^{-3} \text{ radians}$$

Suivant la direction c les déplacements sont un peu plus faibles. Ils correspondent en effet à un angle de diffraction θ' plus petit

$$\theta' = \frac{0,055}{3,92} = 14. 10^{-3} \text{ radians}$$

Remarquons enfin que la position des franges associées par paires nous fournit un moyen de restituer la topographie du cristal. Considérons la coupe x'x de la figure 14b, pl. II, schématisée par la figure 18. Les franges complémentaires se déplacent parallèlement à x'x mais vers la gauche à partir de A et C, et vers la droite à partir de B et D. C'est-à-dire que le faisceau incident fait l'angle $+\theta$ avec le plan 100 on A et C et l'angle $-\theta$ en B et D, de sorte que la coupe x'x présente l'aspect de la figure 19 (p. 14).

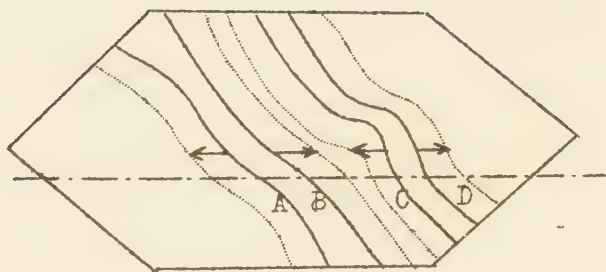


fig. 18

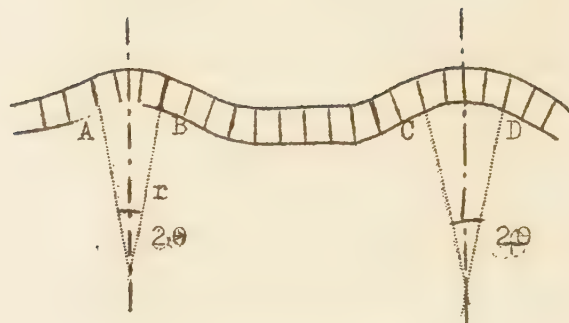


fig. 19

Le long de cette section $x'x$, nous pouvons calculer le rayon de courbure r , supposé constant, des régions déformées.

Nous avons $AB = r \cdot 2\theta$ d'où $r = AB \cdot 1/2\theta$

pour $AB = 1/5 \mu$ et $\theta = 15 \cdot 10^{-3}$ radians.

$$r = 1/5 \cdot \frac{1}{30 \cdot 10^{-3}} \quad r \approx 7 \mu$$

On comprend ainsi qu'une série de coupes pratiquées suivant les directions orthogonales, parallèles aux plans 100 et 001 permette de tracer de proche en proche les lignes d'égale inclinaison du cristal et par suite de restituer approximativement la topographie de sa surface.

Signalons que Rang (¹²), en appliquant au mica sa méthode d'utilisation individuelle des pincesaux diffractés, arrive au même résultat. En focalisant individuellement chaque faisceau diffracté, il obtient évidemment des images plus claires que les nôtres. Malheureusement il lui faut un temps appréciable pour passer d'une image complémentaire à la suivante, si bien que la technique n'est applicable qu'aux figures de diffraction stables. Notre méthode de défocalisation permet au contraire de saisir les phénomènes très instables (MoC_3 , PbI_2), mais l'interprétation des images qu'elle fournit, où sont superposées toutes les bandes sombres et toutes leurs images complémentaires, reste parfois délicate.

Origine des déformations. - König (¹⁸) a supposé une origine chimique à ces déformations. Le cristal d'oxyde molybdique MoO_3 serait partiellement réduit à l'état d'oxyde tétravalent MoO_2 . Cette réduction se

produirait initialement d'un seul côté de la lamelle, ce qui tendrait à l'enrouler sur elle-même comme un copeau de bois, tandis qu'un chauffage vers 280° dans l'air ou l'oxygène régénérerait le cristal et lui rendrait approximativement sa planéité. Soumis à un nouvel examen, le cristal retrouverait alors son aptitude première à donner les franges très mobiles observées au début.

Nous reviendrons sur ce sujet au chapitre IV, p. 36. Signalons cependant que nous n'avons pas retrouvé cet effet de régénération et que d'autre part, nos diagrammes de monocristaux ont prouvé que le cristal présentant les franges était toujours constitué par MoO_3 . Nos observations sur l'iodure de plomb nous ont d'autre part permis d'obtenir des franges identiques avec des évolutions analogues, en l'absence de toute décomposition chimique.

Ces divers arguments nous conduisent donc à rejeter l'interprétation de König. Nous pensons au contraire que les déformations peuvent se produire puis se déplacer sous l'effet de dilatations locales dues simplement à l'échauffement du cristal. Les mouvements du support de collodion peuvent aussi provoquer des distorsions. Pour rendre le collodion plus stable d'une part, et l'échauffement plus uniforme d'autre part, on peut métalliser les préparations. Cette opération a pour effet de rendre les franges beaucoup plus stables conformément à ce qu'on pouvait prévoir.

- Franges à centre de symétrie -

Ces franges ont été observées pour la première fois sur les cristaux d'iodure de plomb. Nous les avons ensuite retrouvées sur l'oxyde molybdique.

Description. - La planche III rassemble quelques aspects du phénomène observé sur des cristaux tabulaires d'iodure de plomb. L'analogie avec une fleur à six pétales est frappante; elle se poursuit d'ailleurs jusque dans l'évolution.

Ces figures n'apparaissent qu'après un bombardement dense et prolongé du cristal. On voit alors se former en un point de sa surface une sorte de bourgeon, qui éclot en donnant naissance à six pétales clairs. Ils se développent, s'épanouissent, et finalement la fleur ainsi formée se fane et disparaît en laissant à sa place une tache confuse. La planche III retrace les étapes de cette évolution.

En examinant les images plus en détail, on constate que chaque pétale est bordé extérieurement et à une certaine distance par une ligne sombre qui se referme sur elle-même au centre de la fleur (fig. 20 pl. IV). Parfois, le raccordement de ces lignes dessine une étoile à six branches (fig. 21, pl. IV) qui peut se développer en forme de rosace (fig. 22, pl. IV). Les pétales de deux rosaces voisines peuvent aussi perdre leur individualité et se raccorder en laissant seulement subsister un lacis de rubans sombres reliant les deux centres de symétrie (fig. 23, pl. IV). Dans quelques cas, ces rubans formés d'un couple de lignes sombres, au lieu de joindre deux centres voisins, se referment sur eux-mêmes en dessinant des noeuds indépendants centrés sur une étoile unique (fig. 24, pl. IV).

Si le bombardement du cristal est poursuivi suffisamment, le phénomène s'estompe et disparaît en laissant place à quelques taches diffuses. Il peut même se faire que le cristal fonde partiellement et se sublime en déposant sur le collodion porte-objet un film microcristallin d'iodure de plomb, qu'on met facilement en évidence par diffraction électronique. Le cristal central conserve par contre sa structure



de cristal unique, aussi longtemps qu'il montre les pseudo-structures décrites plus haut.

Nous avons retrouvé des figures en tout point semblables sur des cristaux d'oxyde molybdique. Elles apparaissent toujours après une observation prolongée et leur évolution suit le cours décrit précédemment pour l'iodure de plomb (fig. 25, pl. V). On retrouve les pétales clairs (fig. 26, pl. V), les bandes sombres (fig. 27, pl. V), les ramifications raccordant les centres de symétrie (fig. 28, pl. V) et les noeuds isolés (fig. 29, pl. V) à la différence près que la symétrie 4 remplace ici la symétrie 6, en bon accord avec les structures cristallines orthorhombique pour MoO_3 , hexagonale pour PbI_2 .

Orientation des franges par rapport au réseau cristallin.— Pour préciser les rapports signalés entre la symétrie des franges et celle du cristal, nous avons fait appel à la méthode du chapitre I, p. 9.

Décrivons d'abord l'arrangement cristallin de l'iodure de plomb. La maille élémentaire est schématisée par la figure 30 où les points noirs représentant les ions Pb^{++} et les cercles les ions I^- . Les premiers forment les plans A et les seconds les plans B qui s'empilent dans un cristal avec la succession ABBABB ... (fig. 31).

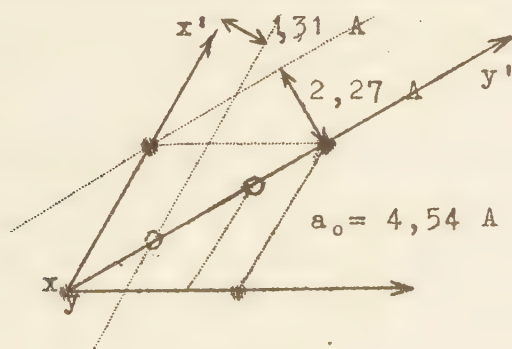


fig. 30.

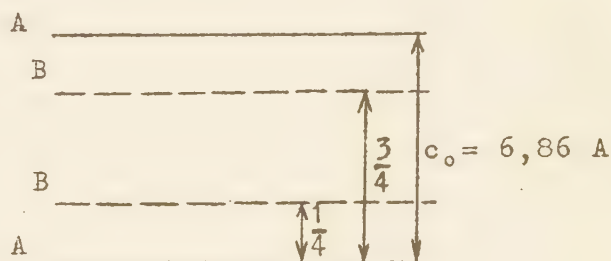


fig. 31

Nos cristaux de quelques centaines d'Å d'épaisseur, sont formés par la superposition d'une centaine de ces feuillets. Ils donnent en diffraction un diagramme de points représenté par la figure 32, pl. IV, où les cercles noirs désignent des spots plus intenses que les autres. La superposition de ce diagramme à l'image du cristal correctement réorientée (voir chap. I, p. 9) conduit aux remarques suivantes:

1°) les pétales sont dirigés suivant les lignes xx' du diagramme

2°) les branches d'étoiles se développent suivant les directions yy'

3°) dans le cas, assez rare d'ailleurs, où le cristal est un hexagone régulier, ses côtés sont parallèles à la direction xx' .

Cette disposition est représentée par les schémas stylisés N° 33, 34, 35, 36 et 37 de la planche IV.

En ce qui concerne les cristaux d'oxyde molybdique dont nous avons déterminé la structure au chapitre précédent p. 11, nous constatons de même que les pétales des figures à centre de symétrie sont orientés suivant les lignes xx' et yy' parallèlement aux troncatures du cristal (plan 101). (fig. 38 à 42, pl. V).

Interprétation par des diffractions de Bragg. - L'étroite liaison que nous venons de mettre en évidence entre les pseudo-structures et le réseau cristallin, conduit tout naturellement à chercher la raison de leur formation dans des phénomènes de diffraction.

Si cette hypothèse est correcte, nous devons pouvoir mettre en évidence les pinceaux diffractés de Bragg en appliquant notre technique de défocalisation limitée. Pour le vérifier, nous avons fait l'expérience et immédiatement retrouvé les images complémentaires claires attendues (fig. 43, pl. VII).

Ce point important acquis, il nous restait à imaginer un type de déformation susceptible de donner aux figures de diffraction leur aspect caractéristique.

L'hypothèse la plus simple consiste à supposer que le cristal se déforme localement en donnant un dôme ou une cuvette. Toutefois avant d'adopter ce point de vue et d'effectuer des calculs, nous avons voulu le soumettre à une vérification expérimentale directe. Nous y sommes parvenus de deux façons :

a) en déposant le cristal sur un collodion percé de petits trous, comme il s'en produit fréquemment. A l'aplomb de ces trous, aux points où le feuillet cristallin n'est plus soutenu, il se forme une dépression (fig. 44) qui, examinée au microscope électronique, donne une frange à six branches centrée sur la cavité (fig. 45, pl. VI).

b) en déposant le cristal sur des billes d'oxyde molybdique préalablement recueillies sur le collodion support. La figure 46 montre les déformations subies par le cristal et la photographie (fig. 47,

PLANCHE IV

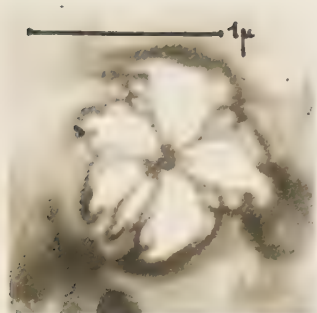


fig 20



fig 21



fig 22



fig 33



fig 34

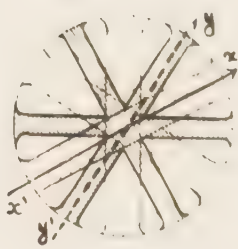


fig 35

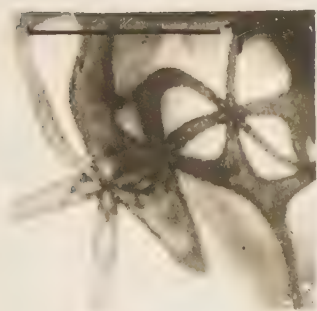


fig 23

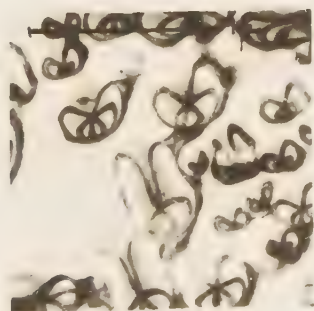


fig 24



fig 32



fig 36

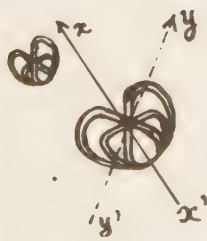


fig 37

Franges à centre
de symétrie sur
les images de
cristaux d'iodure
de plomb.

PLANCHE V

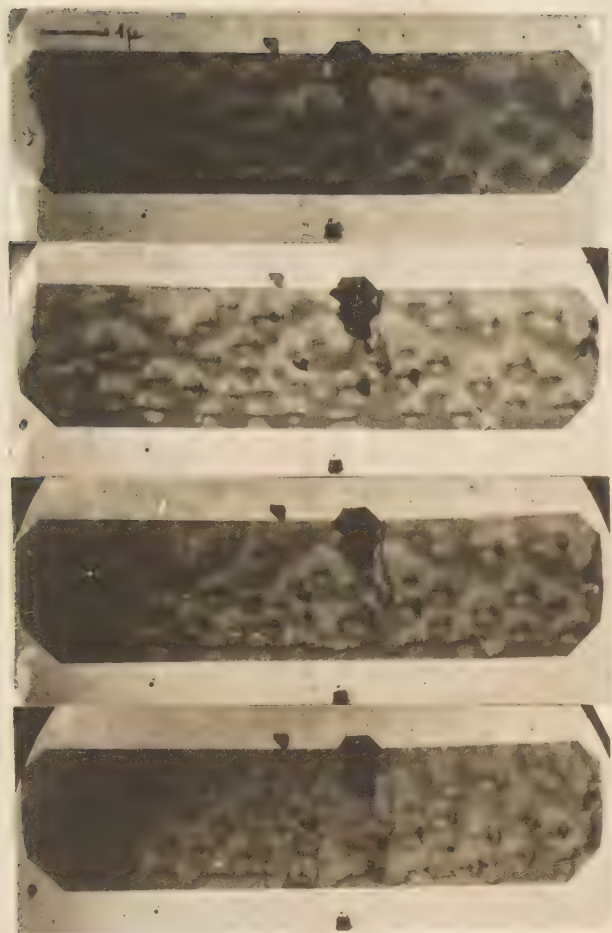


fig25



fig 26



fig 27

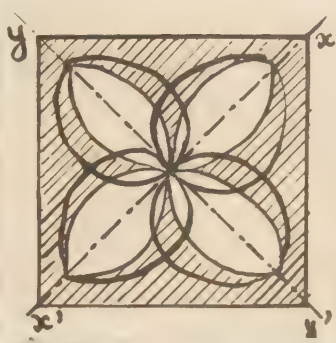


fig38

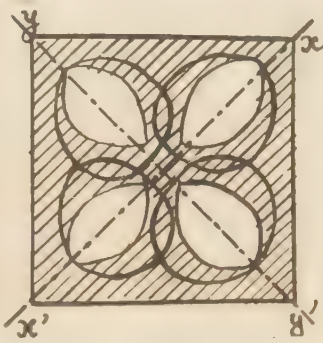


fig39



fig28

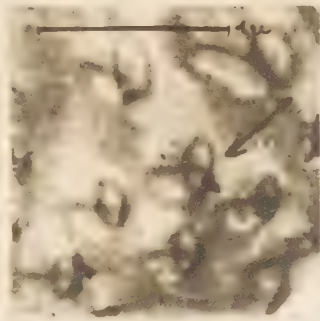


fig 29

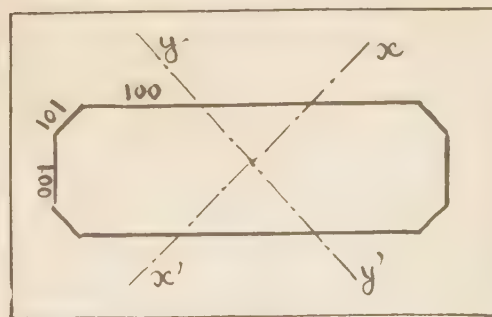


fig42

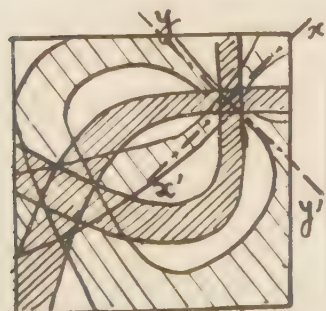


fig40

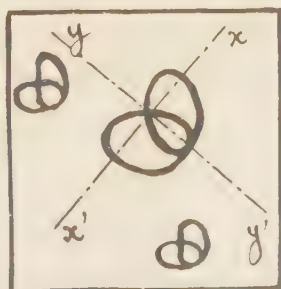
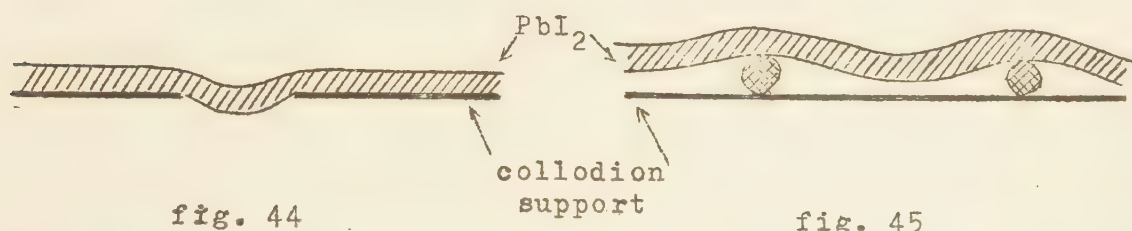


fig41

Franges à centre de symétrie sur les images de cristaux d'oxyde molybdique

pl. VI) reproduit les fleurs obtenues autour de chacune des billes. Ces figures ne se distinguent en rien de celles de la planche III, mais elles présentent la particularité facilement explicable, d'être immédiatement visibles et parfaitement stables.

En somme, ces deux expériences nous prouvent d'une façon sûre que nos franges à centre de symétrie sont dues comme nous le supposions, à la création sur le cristal de déformations locales en forme de dôme ou de cuvette.



Essai d'interprétation quantitative. - 1°) Nous envisagerons tout d'abord, pour l'iodure de plomb, le cas le plus simple d'une déformation en calotte sphérique de rayon r , telle que la figure 48, pl. VI la représente.

Sur cette coupe du feuillet passant par le sommet S de la calotte, les traces des plans réticulaires, normaux à la surface du cristal et au plan de la figure, convergent au centre de courbure O . L'angle α que forme le faisceau incident avec ces plans, croît évidemment en fonction de leur distance au sommet S . Aux points A et B il atteint ainsi la valeur $\theta = \lambda/2d$ requise pour une diffraction de Bragg, si bien que sur l'image électronique, ces deux points paraissent plus sombres que le reste du cristal.

Des coupes de la calotte pratiquées en avant et en arrière de son sommet, présentent également les mêmes couples de points A' et B' , A'' et B'' ,... pour lesquels la diffraction se produit et dont la réunion constitue une double frange sombre épousant la surface du cristal dans un plan normal à celui de la figure 48, pl. VI.

Pour l'iodure de plomb, si le plan de figure est perpendiculaire à la direction yy' (fig. 30), la distance réticulaire correspondante est $d = 2,27 \text{ \AA}$. Si la longueur d'onde électronique vaut $\lambda = 0,055 \text{ \AA}$, on trouve pour l'angle AOB (fig. 48, pl. VI) la valeur :

$$AOB = 2\theta = 0,055/2,27 = 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ rad.}$$

En s'écartant davantage du sommet S (fig. 48), l'angle d'incidence croît encore au delà de θ mais les valeurs 2θ , 3θ , ... si elles sont atteintes, donnent des faisceaux diffractés trop peu importants pour qu'on observe les bandes correspondantes. En fait, l'image du cristal montre seulement les bandes de diffraction du premier ordre.

Reportons nous encore une fois à la figure 48, l'angle α après avoir crû jusqu'à un maximum en s'éloignant de S décroît à nouveau et repasse par la valeur θ (points C et D) avant de redevenir nul. La zone déformée est donc limitée par une frange unique sombre (fig. 49, pl. VI) si bien que la figure de diffraction formée par les plans yy' envisagés présente l'aspect schématisé fig. 50. Si, de plus, on tient compte de

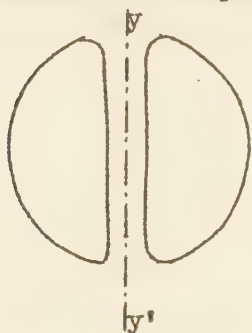


fig. 48

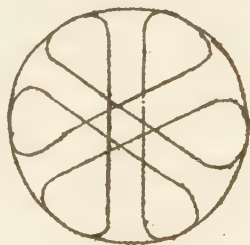


fig. 51

la structure hexagonale de l'iodure de plomb, la normale en S est un axe de symétrie ternaire du cristal. C'est aussi l'axe de révolution de la déformation. La disposition de la fig. 48 se reproduit donc 3 fois dans son plan par des rotations successives de 120° autour de son centre,

pour donner la figure de diffraction complète (fig. 51).

Une autre direction principale de plans xx' (fig. 30) peut aussi intervenir en donnant un système identique au précédent mais avec un décalage de 30° . Pour ce nouveau système, l'équidistance des plans, $d = 1,31 \text{ \AA}$, étant plus faible, l'espacement des franges se trouve augmenté :

$$e' = e \cdot \frac{2,27}{1,31} \quad e' \neq 2e$$

La figure 52, pl. VI reproduit le schéma complet tel que nous venons de le déterminer. En le comparant à la photographie 21, nous constatons qu'il rend compte des faits expérimentaux dans leurs moindres détails, y compris l'intensité relative des bandes qui reste proportionnelle à la densité des plans diffractants correspondants. Ce fait est en accord avec les diagrammes de diffraction de PbI_2 , dont les spots les plus intenses sont bien donnés par les plans yy' d'équidistance $2,27 \text{ \AA}$.

Dimensions d'une déformation correspondant à une image donnée. - Nous venons de voir qu'il est possible de tracer la figure de diffraction

engendrée par une déformation donnée. Inversement, si la figure de diffraction est connue, nous devons pouvoir déterminer approximativement les dimensions de la déformation correspondante, c'est-à-dire sa largeur L et sa hauteur H (fig. 53)

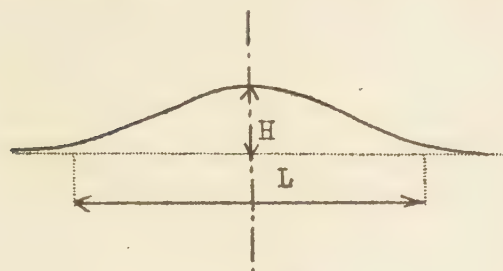


fig. 53

A titre d'exemple numérique, reportons nous à la figure 22, pl. IV. La largeur se mesure directement sur l'image. C'est le diamètre du cercle limitant extérieurement la figure de diffraction. On le trouve égal à 30 mm au grossissement 25.000, soit en réalité $L = 1,2 \mu$. Sur

cette même figure, les franges d'extinction intenses sont distantes de $e = 1/12 \mu$. Connaissant l'angle de diffraction correspondant, nous en tirons le rayon de courbure de la déformation. On a :

$$e = r \cdot 2\theta \text{ (fig. 54)}$$

$$r = e \cdot 1/2\theta$$

$$\text{pour } 2\theta = 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ rad.}$$

$$r = \frac{1}{12} \cdot \frac{10^2}{2,5} \quad r \neq 3,5 \mu$$

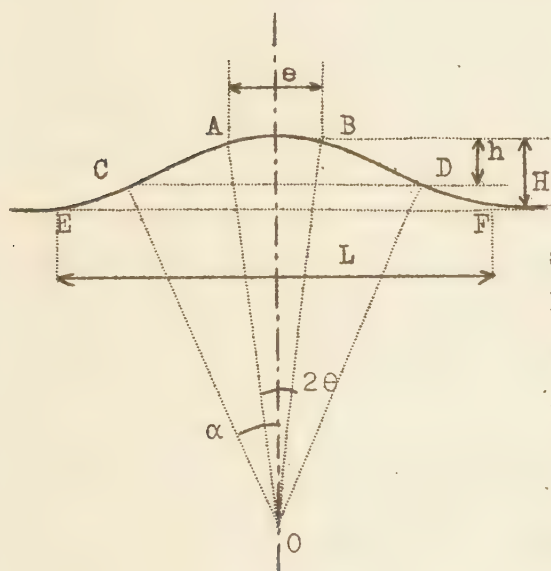


fig. 54

Pour apprécier la largeur CD de la partie sphérique de la déformation, nous mesurons la longueur des bandes d'extinction dans la partie où elles sont rectilignes. Nous la trouvons égale à $4/5 \mu$. Nous pouvons alors calculer l'angle α , moitié de l'angle sous lequel on voit CD du centre de courbure O . Nous avons :

$$\sin \alpha = CD/2 \cdot 1/r$$

$$\sin \alpha = \frac{4}{5 \cdot 2} \cdot \frac{1}{3,5} \quad \sin \alpha \neq 1/9$$

$$h = r(1 - \cos \alpha) = r \alpha^2/2$$

$$h = \frac{35.000}{160} \quad h \neq 220 \text{ A}$$

Cette hauteur h est inférieure à la hauteur totale H que nous cherchons. En tenant compte que $CD/EF = 20/30 = 2/3$ et en faisant l'approximation $h/H = 2/3$, nous trouvons $H \neq 330 \text{ A}$.

Interprétation des figures en forme de fleurs. - Il est évident que le cas idéal d'une déformation sphérique est bien rarement réalisé. En fait, les déformations réelles sont toujours plus compliquées. Le cas le plus courant est celui d'une déformation dont la méridienne est donnée par la figure 55, pl. VI. Les plans B et C parallèles à une section méridienne, découpent des profils pour lesquels le rayon de courbure croît progressivement de S_a en S_b et S_c . Il en résulte que la largeur e de la zone d'extinction relative à la série de plans orthogonaux aux méridiennes envisagées, augmente avec la distance au centre de la déformation et que la double bande d'extinction parallèle à yy' s'élargit et s'ouvre comme l'indique la figure 56, pl. VI. La bande parallèle à xx' a un contour semblable mais, sa largeur étant approximativement double, elle s'ouvre beaucoup plus et se termine aux points marqués 1 et 3 alors que l'autre aboutit aux points 1 et 2 (fig. 56, pl. VI). Cette image se répétant trois fois à 120° , on aboutit à la figure 57, pl. VI, stylisation des rosaces de la photographie 20, pl. IV. La photographie 21, pl. IV qui présente en son centre une étoile à six branches s'interprète encore sans difficulté. Il suffit de supposer que les bandes d'extinction sont plus écartées au centre de la figure de diffraction, c'est-à-dire que la déformation est plus aplatie au voisinage de son sommet. Les pétales sont, de ce fait, entièrement recouverts par la zone d'extinction faible dont les contours se recoupent deux fois en dessinant une étoile à 6 branches (schéma 58, pl. VI et fig. 21, pl. IV).

Partant d'une image donnée, il est inversement possible de reconstituer les profils successifs A, B, C, ... fournis par les plans de section A, B, C, ... et de tracer graphiquement les méridiennes de la déformation. Une seule méridienne suffit dans le cas d'une image symétrique produite par une déformation rigoureusement de révolution. Dans le cas le plus fréquent d'une image dissymétrique, on détermine plusieurs méridiennes coupant le cristal le long de directions habilement choisies. Il est ainsi toujours possible de reconstituer avec précision la déformation responsable d'une image de diffraction donnée.

Interprétation des formes de la figure 24, pl. IV (noeuds se refermant sur eux-mêmes). - Nous avons déjà décrit ces figures qui se distinguent

PLANCHE VI

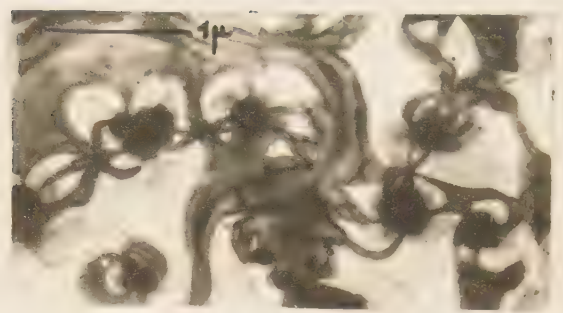
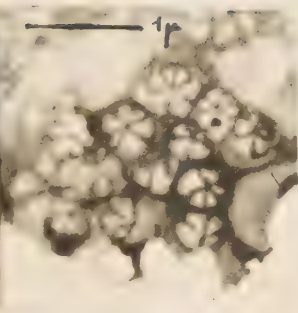
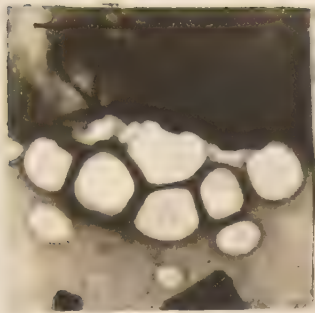


fig45

fig46

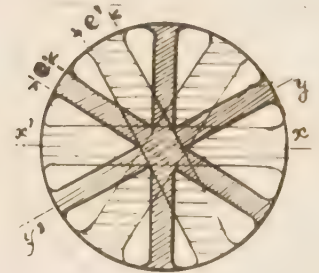
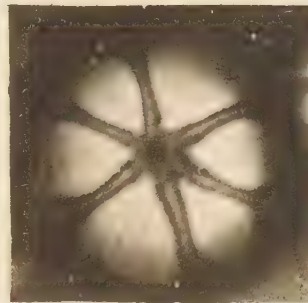


fig48

fig49

fig52

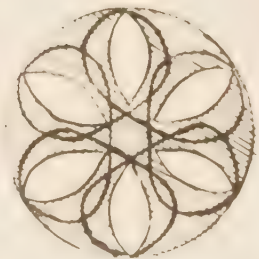
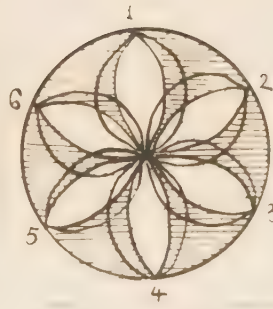
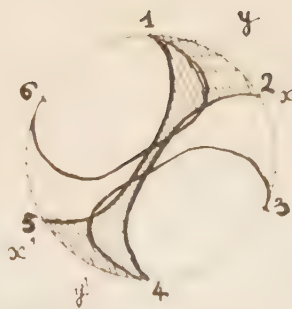


fig55

fig56

fig57

fig58

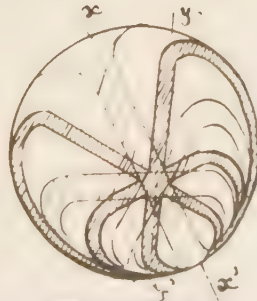
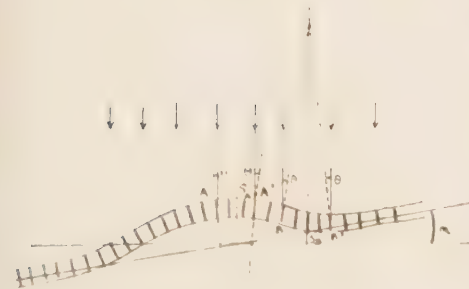


fig61

fig59

Déformations en dômes - figures de diffraction.

fig 60

des précédentes en ce qu'elles présentent très nettement un plan de symétrie (fig. 59, pl. VI). Comme toutes les figures de ce type, observées sur un même cristal, sont semblablement orientées (fig. 24, pl. IV) nous avons pensé qu'une inclinaison d'ensemble du cristal devait être responsable de leur aspect particulier. Supposons donc que la normale au cristal fasse l'angle α avec le faisceau incident (fig. 60, pl. VI). Les plans, normaux à la lame cristalline envisagés jusqu'ici, se présentent 2 fois sous l'incidence nulle en S_a et S_b . De part et d'autre de ces points, c'est-à-dire en A, A' et en B, B' l'incidence est alternativement $+\theta$ et $-\theta$ et les franges d'extinction apparaissent. Si on envisage maintenant des coupes successives du cristal par des plans parallèles à la section méridienne (fig. 55, pl. VI), on remarque que les deux séries de franges A, A' et B, B' sont de plus en plus rapprochées et qu'elles finissent par se confondre. Elles dessinent ainsi une courbe fermée dont une partie, rectiligne, correspond à une branche des rosaces observées précédemment, tandis que l'autre, arrondie, limite extérieurement la déformation. Compte tenu de la symétrie du cristal, on obtient évidemment trois bandes semblables dont les parties rectilignes se coupent à 120° selon le schéma 61, pl. VI. Les zones d'extinction faibles donnent encore une deuxième série de courbes fermées qui s'orientent à 30° des précédentes.

Détermination de l'inclinaison du cristal à partir d'une image.

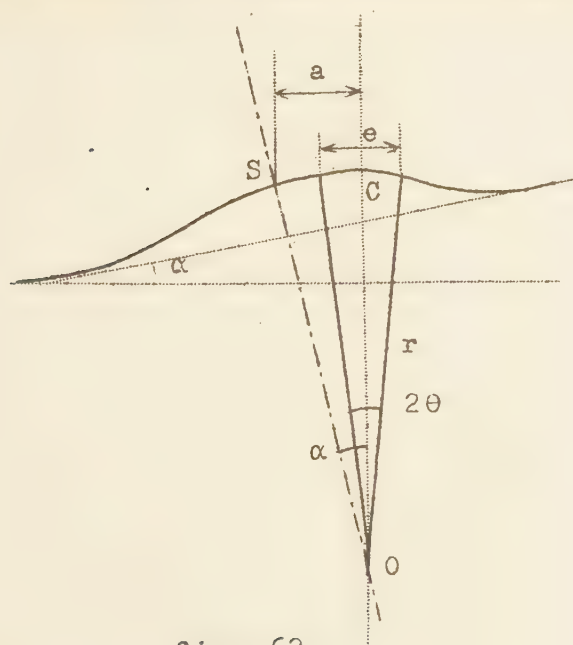


fig. 62

Il doit être possible de déterminer approximativement l'inclinaison du cristal en tenant compte de l'aspect des images décrit au paragraphe précédent. Envisageons le cas de la figure 59, pl. VI dont la figure 62 représente une coupe suivant la ligne de plus grande pente.

Nous calculons tout d'abord comme précédemment le rayon de courbure r de la section méridienne par la formule : $e = r \cdot 2\theta$

e (écartement des bandes intenses) vaut $1/20 \mu$.

$$2\theta = 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ radian} ; \text{ d'où } r = \frac{1}{20} \cdot \frac{10^2}{2,5} = 2 \mu$$

Le centre S de la figure de diffraction est distinct de celui de la déformation C, mais on peut mesurer leur distance a sur l'image; on trouve approximativement $a = 1/10 \mu$. D'après la figure 62 :

$$a = r \cdot \alpha, \text{ d'où } \alpha = a/r, \alpha = 1/10 \cdot 1/2 = 1/20 \text{ rad.}$$

$$\alpha = 5 \cdot 10^{-2} \text{ rad.}$$

Rosaces étalées (fig. 23, pl. IV).— Ces figures ont une forme bien définie au début de l'observation mais, après un certain temps, on assiste à un développement important des pétales qui se rejoignent d'une rosace à l'autre pour ne laisser subsister qu'un réseau de rubans sombres (fig. 23, pl. IV). Ceci s'explique par une extension des déformations qui s'étalent et arrivent à se joindre par des ramifications cylindriques. Souvent, dans ce mouvement, une déformation nouvelle se crée entre deux autres, et une étoile apparaît brusquement en un point précédemment uniformément éclairé (fig. 3, pl. III).

Cas des cristaux d'oxyde molybdique.— L'interprétation que nous venons de développer pour les images des cristaux d'iodure de plomb est valable pour les images en tout point semblables observées avec les cristaux d'oxyde molybdique. Ceux-ci se présentent à l'échelle de la maille élémentaire comme l'indique la figure 63. Dans le cas d'une déformation présentant un axe de révolution, il se produit des diffractions intenses suivant les deux directions perpendiculaires a et c qui sont parallèles à des plans fortement réflecteurs pour les électrons. Les images présentent donc des bandes d'extinction intenses orientées à 90° les unes des autres, distantes de e_1 dans la direction a et de e_2 dans la direction c (fig. 64)

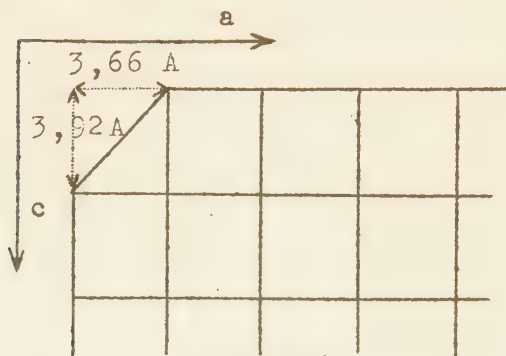


fig. 63

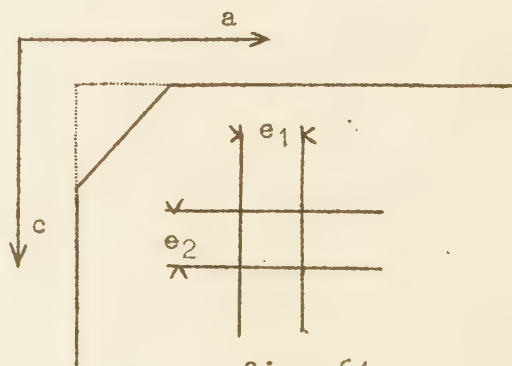


fig. 64

Pour un rayon de courbure r du cristal, on a :

$$e_1 = r \cdot 2\theta_1 \text{ et } e_2 = r \cdot 2\theta_2$$

$$2a\theta_1 = \lambda \text{ et } 2c\theta_2 = \lambda$$

d'où $\theta_1/\theta_2 = c/a$ et $e_1/e_2 = c/a$; soit $e_1/e_2 = 3,92/3,66$ si par exemple $e_1 = 1$ mm, on aurait $e_2 = 0,9$ mm, écart trop faible pour être retrouvé avec certitude sur des images médiocrement définies à cause de leur instabilité.

D'autres lignes d'extinction sont à prévoir, orientées suivant xx' et yy' approximativement à 45° des précédentes. Elles sont moins intenses et plus écartées car les plans qui leur donnent naissance sont moins denses et plus rapprochés. Leur écartement est par exemple de 1,8 mm quand celui des premières lignes d'extinction est seulement de 1 mm.

Ces remarques permettent de représenter les images de diffraction produites par une déformation sphérique suivant les schémas 38 et 39 stylisant les photographies 26 et 27 pl. V. Le cas des cristaux d'oxyde molybdique inclinés par rapport au faisceau incident, est illustré par les figures 25, 29 et par le schéma 41 pl. V. On retrouve les franges fermées sur elles-mêmes que donne l'iodure de plomb (fig. 24 et 37, pl. IV), mais elles comportent deux boucles au lieu de trois.

Images doubles entrelacées produites par des cristaux superposés.-

Au cours de ce travail, nous avons trouvé assez fréquemment des préparations contenant des lamelles d'iodure de plomb intimement superposées, dont les réseaux cristallins ne sont pas parallèles puisqu'ils donnent des diagrammes de points distincts, formant entre eux un certain angle. Il arrive aussi, mais plus rarement, que les deux lamelles superposées aient des réseaux parallèles; elles se comportent alors en diffraction comme un cristal unique. En examinant précisément la zone commune de contact entre feuillets, nous avons retrouvé les figures entrelacées, si curieuses, déjà signalées par Möllenstedt ⁽¹⁹⁾ dans PbI_2 , par Rang ⁽²⁰⁾ sur le mica et qu'ils ont interprétées comme étant les franges de diffraction d'une cavité lenticulaire.

La stabilité des figures observées sur le mica a permis à Rang d'étudier individuellement les images complémentaires données en champ sombre par les pinceaux diffractés (voir p. 6). Il a pu déterminer

approximativement la forme de la cavité, son diamètre et sa hauteur (*). Bien que plus brillantes et plus nettes, les images de PbI_2 n'ont pu être analysées par la technique de Rang à cause de leur trop grande instabilité, mais le parallélisme entre les deux phénomènes est si grand qu'il conduit naturellement à l'idée d'une origine commune.

Nos observations personnelles ne font d'ailleurs que confirmer celles de Möllenstedt et Rang, en leur apportant simplement quelques précisions. C'est ainsi que l'observation directe et la photographie nous ont permis d'assister à la naissance des petites cavités, à la formation des franges entrelacées et à leur brusque disparition provoquée par l'éclatement de la bulle (fig. 65, pl. VII). A la suite de notre étude sur les déformations en dôme ou cuvette, les cavités lenticulaires nous apparaissent comme la superposition de deux déformations simples, de signes contraires, chaque partie, supérieure et inférieure donnant son image de diffraction propre. Ainsi envisagées, les figures de diffraction entrelacées (fig. 66, pl. VII) résultent de la superposition de deux figures plus simples telles que celles des photographies 22, pl. IV et 49, pl. VI.

Dans le cas idéal d'un double feuillet, rigoureusement normal au faisceau incident et formant une lentille dont les deux faces sont bien symétriques, tout se passe, quand les réseaux sont parallèles, comme si on avait à faire à une déformation simple du type fig. 48, pl. VI. En réalité, la lentille est toujours plus ou moins inclinée et on distingue les deux figures de diffraction formées par chacune des faces. Les éléments de ces figures sont orientés parallèlement mais leurs centres sont décalés comme le montrent les schémas 67 et 68, pl. VII. Notons au passage que réciproquement, l'inclinaison du cristal peut se déduire de la distance a mesurée entre les centres des étoiles que donnent les deux faces de la lentille. Ce moyen nous a permis (chap. V) de calculer l'angle formé par deux feuillets donnant des franges d'interférence.

Comme nous l'avons signalé plus haut, les réseaux des feuillets superposés ne sont pas toujours parallèles. S'ils font entre eux l'angle α , ce défaut de parallélisme, mis en évidence par un diagramme de points, se retrouve également dans l'angle que forment entre elles les bandes d'extinction données par les 2 parois de la cavité (fig. 69 et 70, pl. VII).

(*) 4ème Congrès de la Sté Allemande de Microscopie Electronique
Tubingen, 1952. Travail non encore publié.

PLANCHE VII



fig 65

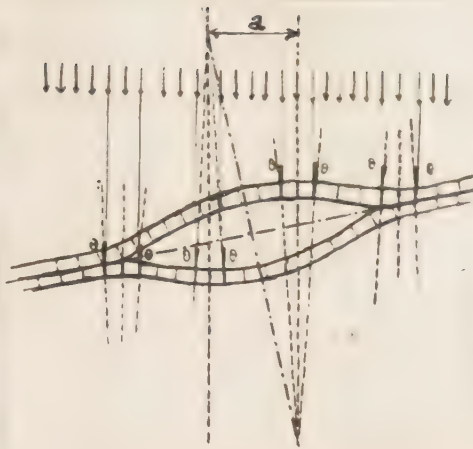


fig 67

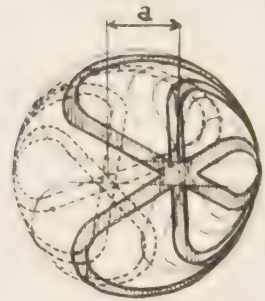


fig 68

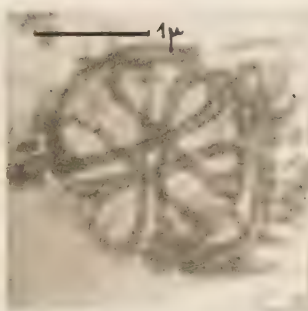


fig 66

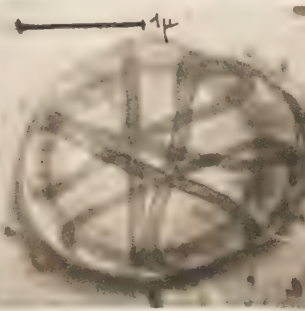


fig 69

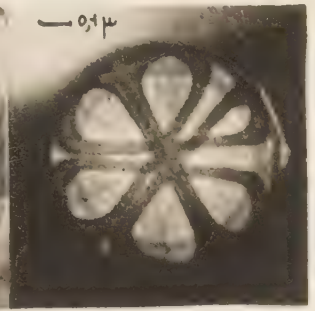


fig 70



fig 71

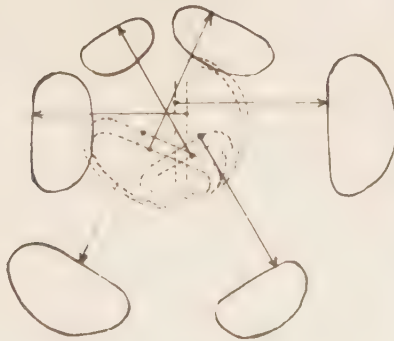


fig 72



fig 43

franges de
cavités lenticulaires

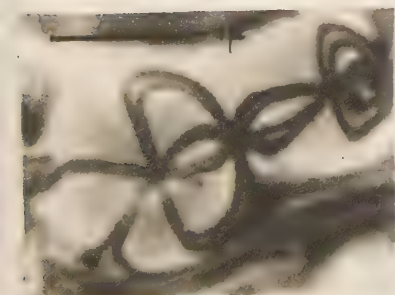


fig 73

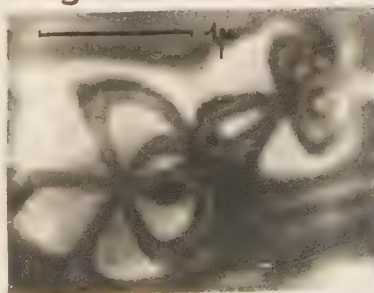


fig 74

Application de la méthode de défocalisation limitée.— Nous avons signalé plus haut que la méthode d'analyse de Rang n'était pas applicable à l'iodure de plomb à cause de l'instabilité des figures. Notre méthode de défocalisation limitée, grâce à une mise en oeuvre quasi instantanée, ne présente pas ce défaut et nous l'avons appliquée sans difficulté. La figure 43, pl. VII reproduit la photographie défocalisée d'une déformation donnant une figure simple à 6 branches selon le schéma 71, pl. VII; on y retrouve facilement les six images complémentaires.

Comme nous l'avons déjà expliqué, le périmètre extérieur de chaque boucle correspond à un angle de diffraction $+\theta$ tandis que le périmètre intérieur correspond à l'angle $-\theta$. Comme il faut alors s'y attendre, chaque boucle sombre possède deux franges complémentaires, l'une correspondant à son périmètre extérieur et l'autre à son périmètre intérieur. Ces deux franges se déplacent au cours d'une défocalisation limitée dans des sens opposés, perpendiculairement aux plans diffractants qui leur donnent naissance. Pour l'ensemble de la figure, nous observons donc trois couples de franges complémentaires dont les déplacements, deux à deux opposés et de même amplitude, se font suivant trois directions à 120° l'une de l'autre (fig. 72, pl. VII). Dans le cas présent, ce déplacement est de 1μ pour un défaut de mise au point de 40μ . Nous en tirons l'équidistance des plans diffractants par la formule :

$$d = n\lambda. Gx/l \quad \text{où } x = 40 \mu \text{ et } l/G = 1 \mu$$

$$d = n. 0,055. 40 = n. 2,20 \text{ A.}$$

Pour le premier ordre $n = 1$, on trouve $d = 2,20 \text{ A}$ alors que la valeur correcte est $d = 2,27 \text{ A}$. On peut considérer ce résultat comme une vérification quantitative suffisante de nos interprétations précédentes. Notons de plus, que la défocalisation fait apparaître d'une façon particulièrement simple, le rôle joué par la symétrie ternaire du cristal dans l'aspect des figures.

Influence d'une variation de λ sur l'aspect des images.— Nous avons exprimé la distance qui sépare deux franges correspondant aux angles de diffraction $+\theta$ ou $-\theta$ par la relation : $e = r. 2\theta$ avec $2d. \theta = \lambda$, soit $e = r. \lambda/d$.

Toute variation de la longueur d'onde associée à l'électron doit donc entraîner une variation correspondante de l'interfrange e .

Soient V et V' , deux tensions accélératrices différentes; nous avons entre les longueurs d'onde correspondantes λ et λ' la relation : $\frac{\lambda}{\lambda'} = \sqrt{\frac{V'}{V}}$ tandis que le rapport des interfranges sera : $\frac{e}{e'} = \frac{\lambda}{\lambda'} = \sqrt{\frac{V'}{V}}$.

Nous avons fait l'expérience avec $V = 40$ kV et $V' = 30$ kV. Dans ces conditions, nous devrions avoir :

$$\frac{e}{e'} = \sqrt{\frac{30}{40}} = 0,86$$

En examinant les photographies 73 et 74, pl. VII, on constate effectivement l'élargissement de l'interfrange provoqué par la réduction de la tension accélératrice et les mesures qu'on peut faire sont en bon accord avec la valeur $e = 0,86 e'$ calculée plus haut.

Origine des déformations..- Les cristaux d'iodure de plomb sont déposés sur le porte-objet à partir d'une solution aqueuse. Il est vraisemblable que des microgouttes d'eau ou de gaz restent emprisonnées entre le support et le feuillet ou entre deux feuillets superposés. L'élévation de température due au bombardement électronique, expliquerait ainsi facilement le développement des déformations simples en forme de dôme ou cuvette, aussi bien que la formation des cavités lenticulaires.

- CHAPITRE IV -

Franges en lames de parquet ou arêtes de poisson, type d).

Ce genre de pseudo-structures qui apparaît sur les cristaux d'oxyde molybdique a été décrit pour la première fois par Bernard et Pernoux (⁹). König (¹⁸) a essayé d'expliquer le mécanisme de leur formation.

Description.- Ces franges apparaissent sur certains cristaux lorsqu'ils sont introduits pour la première fois dans le champ d'observation du microscope électronique. Après quelques secondes, on voit se dessiner sur ces cristaux des domaines étroits, allongés en forme de navettes, et orientés suivant deux directions voisines de celles formées par les plans 101, $10\bar{1}$ (fig. 75, pl. VIII). Ces domaines paraissent tantôt plus sombres, tantôt plus clairs que le reste du cristal. Ils peuvent aussi présenter des parties sombres et claires alternées ou même changer très rapidement de brillance, comme les écailles d'un poisson en mouvement. Au premier stade de leur développement, ils sont limités par une ligne étroite sombre qui les détache du reste du cristal (fig. 75, pl. VIII coin supérieur droit, fig. 80, pl. VIII et 81, pl. IX). Cette ligne s'atténue ensuite, tandis que les domaines s'allongent et s'élargissent en restant approximativement à la même place (fig. 76, pl. VIII, domaine indiqué par une flèche). Au cours de cette extension rapide, les franges finissent par se rejoindre et la transparence du cristal reprend bientôt l'aspect continu habituel (fig. 77, pl. VIII).

Il est assez rare que les lames de parquet apparaissent seules; elles sont généralement accompagnées par les bandes larges et diffuses du type a), qui se développent parallèlement avec un certain retard mais deviennent vite prépondérantes (fig. 78 et 79, pl. VIII) et subsistent finalement seules après quelques dizaines de secondes. Dans les régions où les deux systèmes coexistent, il se produit entre eux des interactions caractéristiques. Les bandes diffuses type a) sont interrompues par les franges en lames de parquet qui leur donnent ainsi l'aspect de feuilles de fougères ou d'arêtes de poisson (fig. 82, pl. IX). Ces perturbations disparaissent ensuite comme le système d) lui-même; elles sont encore visibles en de rares points sur les fig. 78

et 79 de la série montrant leur évolution (pl. VIII). Sous leur aspect le plus pur, les franges d) recouvrent la totalité du cristal d'un assemblage régulier qui rappelle la disposition des lames d'un parquet (fig. 5, pl. I et 83, pl. IX). Cet aspect est également transitoire comme les précédents, et, en une dizaine de secondes, le cristal reprend sa transparence normale (fig. 84, pl. IX).

Pour terminer avec cette rapide description, il convient de souligner qu'une fois disparues, les franges ne réapparaissent jamais sur le même cristal, même si on laisse la préparation se refroidir pendant des heures en la retirant du microscope. Par contre, l'évolution des franges en lames de parquet peut être fractionnée en interrompant le fonctionnement du microscope entre les observations. La préparation n'est ainsi soumise au bombardement électronique que pendant le temps très court de la mise au point et de la pose photographique (quelques secondes). On constate alors que l'évolution ainsi interrompue, reprend après plusieurs heures, au point même où on l'avait laissée. Le phénomène est irréversible bien qu'il disparaisse sans laisser de traces apparentes ni dans l'aspect du cristal, ni dans sa structure, comme le prouvent les diagrammes de diffraction réalisés à chaque stade d'observation.

Ces diagrammes de monocristaux conservent en effet le même aspect pendant toute l'évolution et montrent qu'il s'agit toujours de la même forme cristalline MoO_3 (fig. 11, pl. II). Les changements de l'image décrits plus haut ne sont donc pas imputables, comme certains l'ont admis, à une modification de la maille élémentaire consécutive à une transformation chimique.

Interprétation dans le cadre des phénomènes de diffraction.— Nous avons déjà signalé (p. 2) que les images de petits cristaux lamellaires passent du sombre au clair (ou inversement) si l'incidence du faisceau électronique varie, même faiblement de part et d'autre de sa position première. C'est ce qui se produit par exemple, si le film support d'une préparation se déchire en déplaçant les cristaux. On les voit alors changer rapidement de transparence et donner l'illusion de facettes réfléchissantes s'éclairant et s'éteignant au hasard de leur orientation. Nous avons montré (chapitre II, p. 11) que ce phénomène

PLANCHE VIII



fig 75

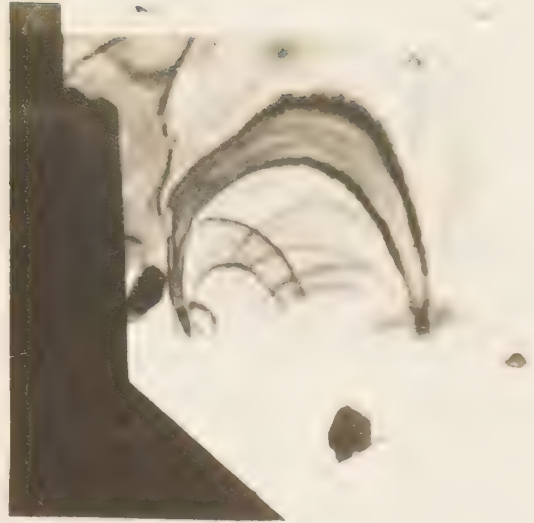


fig 78



fig 76

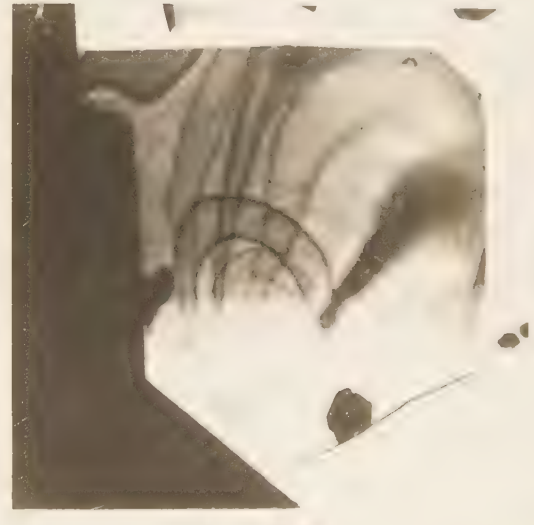


fig 79



fig 77



fig 80

était lié à la diffraction du faisceau incident par les plans réticulaires. Comme nous l'avons déjà signalé, les domaines en lames de parquet donnent également cette même sensation de surfaces réfléchissantes en mouvement. Il semble donc logique de rapprocher les deux effets et de leur donner une interprétation commune.

La comparaison des fig. 75 et 76, pl. VIII montre bien les changements de brillance survenus d'une pose à l'autre, en quelques secondes; mais le rôle joué par l'incidence du faisceau électronique dans l'aspect des images ressort plus nettement encore des fig. 83 et 84, pl. IX, où les lames de parquet passent du sombre au clair en pénétrant dans le domaine où, par suite d'un changement général de courbure, le cristal devient plus transparent (région claire limitée par une frange sinueuse du type a) bien visible sur la fig. 84). Les interactions entre les franges sinueuses plus étroites et les franges en lames de parquet sont encore plus significatives. Lorsqu'une frange sinueuse est coupée par un des domaines décrits précédemment (fig. 76), la bande

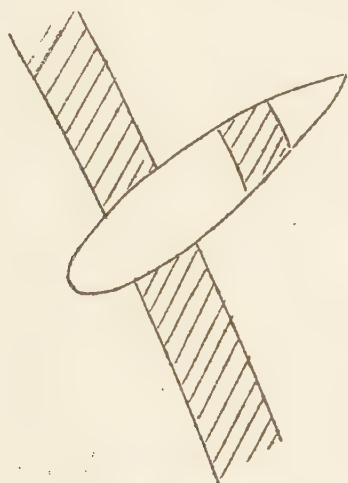


fig. 85

sombre est généralement déplacée comme l'indique la figure 85. Ce fait s'interprète simplement en admettant que le cristal et le domaine lenticulaire ont des surfaces différemment orientées par rapport au pinceau électronique incident. On en trouve des exemples concrets fig. 76, pl. VIII (domaine entouré d'un rectangle) et fig. 82, pl. IX (tout le long des deux franges sinueuses hachées par les franges croisées du type d); arêtes de poisson)

De toute évidence, la diffraction des électrons joue le rôle fondamental dans l'apparition de ces nouvelles pseudo-structures. Nous avons pourtant voulu mettre directement en évidence le pinceau diffracté par les domaines sombres; l'expérience a été couronnée de succès et nous avons effectivement retrouvé en champ sombre, les images complémentaires attendues.

Cet ensemble d'observations cohérentes, nous permet maintenant d'affirmer que les franges du type d) comme les précédentes, sont uniquement dues à la diffraction des électrons par certaines régions du cristal.

Orientation des domaines par rapport au réseau cristallin.— Nous avons déjà remarqué qu'ils étaient allongés suivant deux directions voisines de celles des plans 101 et $\bar{1}0\bar{1}$. Pourtant, en regardant les images de plus en plus près, on se rend compte que l'approximation est grossière (coin supérieur droit des figures 76 et 80, pl. VIII). Rappelons brièvement que le plan d'un feuillet d'oxyde molybdique est défini par les axes a et c d'un système orthorhombique de maille élémentaire $a = 3,66 \text{ \AA}$; $b = 13,94 \text{ \AA}$; $c = 3,92 \text{ \AA}$. Le polygone limitant le cristal est constitué par les traces des plans rectangulaires 100 et 001 et la trace du plan 101 qui fait respectivement avec les deux autres des angles de 47° et 43° (fig. 86). Si les domaines étaient orientés suivant la direction 101, ils

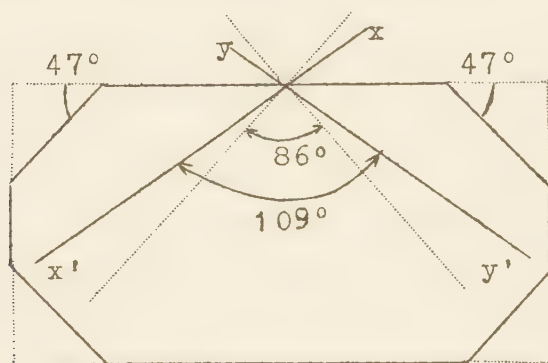


fig. 86

s'aligneraient sur les droites en pointillé (fig. 86) qui font entre elles un angle de 86° . Il n'en est rien; ils s'alignent en réalité suivant les directions xx' et yy' (fig. 86) qui font entre elles un angle α voisin de 109° , ou plus rarement de 115° . Pour préciser ce point, nous avons mesuré α sur un grand nombre de cristaux. Les mesures s'écartent

parfois sensiblement des valeurs moyennes précédentes ce qui s'interprète par le fait que la surface du cristal n'est pas toujours normale au faisceau incident. Ce défaut est révélé par simple mesure de l'angle défini par le grand côté du cristal et une des troncatures (fig.

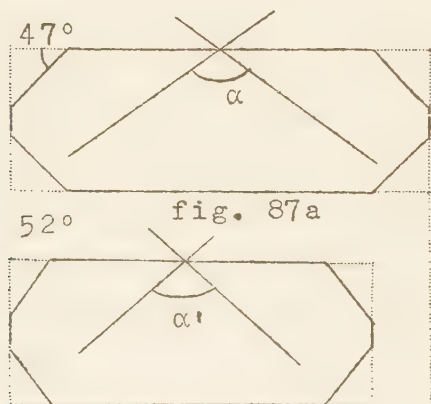


fig. 87b

87b). La valeur correcte de cet angle est de 47° (fig. 87a) on mesure alors $\alpha = 109^\circ$. Si le cristal est soulevé de telle façon que son grand côté soit vu en raccourci, l'angle de la troncature augmente et passe par exemple de 47° à 52° . L'angle α' qu'on mesure alors est inférieur à α , il vaut par exemple 100° . On conçoit qu'il

soit facile d'établir une correction permettant de retrouver la valeur exacte de α . Dans le cas de la fig. 87, une approximation très suffisante est donnée par : $\frac{52}{47} = \frac{90 - \alpha/2}{90 - \alpha'/2}$. Ce qui, avec $\alpha' = 100^\circ$, donne $\alpha = 108^\circ$.

Sur 40 mesures, 30 ont donné α compris entre 108° et 112° et 10, α compris entre 114° et 118° . Les plans dont l'orientation est la plus voisine, sont d'une part les plans 203, 20 $\bar{3}$ faisant entre eux l'angle calculé de $108^\circ 52'$ et d'autre part les plans 305, 30 $\bar{5}$ d'angle calculé $114^\circ 32'$. Ce qui nous permet de conclure que les franges en lames de parquet se développent généralement suivant les traces des plans 203, 20 $\bar{3}$ et, plus rarement suivant les directions 305, 30 $\bar{5}$.

Essai d'interprétation.— Les interactions entre les bandes sombres du type a) et les domaines du type d) telles que nous les avons observées (fig. 85) nous ont conduits à supposer que les domaines en question étaient constitués par des régions où la surface du cristal avait changé d'orientation. Cette hypothèse rend bien qualitativement compte des faits expérimentaux, changement brusque de transparence, déplacement des portions de bandes d'extinction coupées par les domaines lenticulaires, présence d'images complémentaires; voyons si elle est susceptible de les interpréter quantitativement. Rappelons que les franges sinueuses type a) sont le plus souvent associées deux par deux et sont

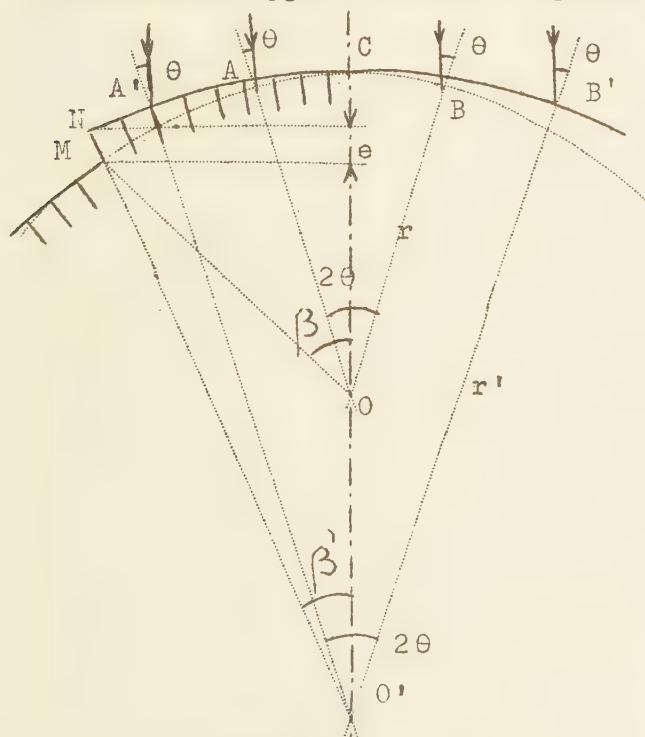


fig. 88

dues à une courbure générale du cristal (fig. 88). Deux bandes sombres apparaissent aux points A et B où l'incidence du faisceau par rapport à ces plans est $+\theta$ et $-\theta$ (chap. II, p. 12). Supposons maintenant (fig. 88) que la courbure au point C diminue, c'est-à-dire que le rayon de courbure du cristal passe de r à r' tandis que le centre de courbure se déplace de O en O' . Les nouveaux points d'incidence θ s'obtiennent en menant par O' les parallèles $O'A'$ et $O'B'$ à OA et OB . On se rend compte ainsi que la frange A vient en A' tandis que la frange B vient en B' .

Poursuivons plus avant le calcul en introduisant des données numériques. Nous prendrons $\lambda = 0,055 \text{ \AA}$. Pour $d = 3,66 \text{ \AA}$, la loi de Bragg donne :

$$e = \lambda/2d = \frac{0,055}{2 \cdot 3,66} = 7,5 \cdot 10^{-3} \text{ rad.}$$

En supposant une courbure régulière, $AB = l = r \cdot 2\theta$. Si $l = 1/10 \text{ \mu}$, (valeur trouvée expérimentalement) $r = 1/10 \cdot 1/15 \cdot 10^{-3} = 7 \text{ \mu}$. Si $AA' = \frac{1}{2} l$; $r' = 2r = 14 \text{ \mu}$.

Comme nous le savons déjà par les images, le changement de courbure n'intéresse qu'une étendue limitée du cristal, il doit donc se produire aux frontières de ce domaine une discontinuité MN dont nous pouvons approximativement calculer l'importance e (fig. 88). On peut admettre que dans ce glissement de la surface cristalline CM reste égal à CN. Si cette distance CM vaut $3/2 l = 3/20 \text{ \mu}$. On a :

$$\beta = MOC = CM/r = \frac{3}{20 \cdot 7} = 1/50 \text{ rad.}$$

$$\beta' = NO'C = CN/r' = \frac{3}{20 \cdot 14} = 1/100 \text{ rad.}$$

Projetons $O'N$ et OM sur OC . Nous obtenons au second ordre près :

$$\begin{aligned} e + OM \cos \beta + OO' &= O'N \cos \beta' \\ e + r \cos \beta + (r' - r) &= r' \cos \beta' \\ e = r(1 - \cos \beta) - r'(1 - \cos \beta') \\ e = r \frac{\beta^2}{2} - r' \frac{\beta'^2}{2} \end{aligned}$$

soit pour les valeurs adoptées :

$$2e = 7(1/50)^2 - 14(1/100)^2$$

$$2e = 14 \cdot 10^{-4} \text{ \mu} \quad \text{d'où} \quad e = 7 \text{ \AA}$$

Si notre hypothèse est correcte, le domaine serait donc limité par une discontinuité d'une dizaine d'angströms et le glissement résultant suffirait à expliquer quantitativement le déplacement observé de la frange sombre. Nous pouvons répéter ce raisonnement sur des exemples précis extraits de nos documents photographiques. Le premier, schématisé par la fig. 89, est pris sur la photographie 77, pl. VIII où le domaine est marqué d'un cercle.

On mesure : $l = 15/100 \text{ \mu}$; $l' = 10/100 \text{ \mu}$; $L = 15/100 \text{ \mu}$.

On a donc pour $2\theta = 15 \cdot 10^{-3} \text{ rad.}$: $r = 15/100 \cdot 10^3/15 = 10 \text{ \mu}$.

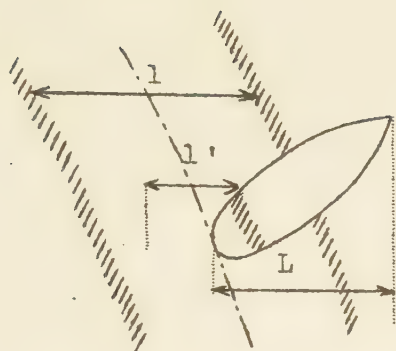


fig. 89

$$\begin{aligned}
 r' &= 10/100 \cdot 10^3/15 = 20/3 \mu \\
 &= L/r = 15/100 \cdot 1/10 = 3/200 \text{ rad} \\
 &= L/r' = 15/100 \cdot 3/20 = 9/400 \text{ rad} \\
 e &= r \frac{\beta^2}{2} - r' \frac{\beta^2}{2} \\
 e &= 10/2 (3/200)^2 - 20/6 (9/400)^2 \\
 e &= 6 \text{ A.}
 \end{aligned}$$

Un second exemple nous est fourni par la photographie 75, pl. VIII (domaine repéré par un cercle) et schématisé par la fig. 90.

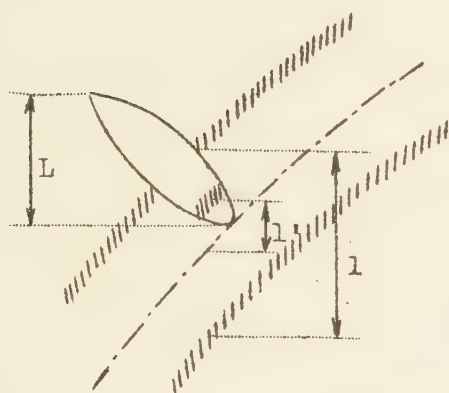


fig. 90

$$\begin{aligned}
 \text{On mesure : } l &= 1/10 \mu \\
 l' &= 1/20 \mu \\
 L &= 1/10 \mu
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 2\theta &= 14 \cdot 10^{-3} \\
 r &= 1/10 \cdot 10^3/14 = 7 \mu \\
 r' &= 7/2 \mu \\
 &= 1/10 \cdot 1/7 = 1/70 \\
 &= 1/10 \cdot 2/7 = 1/35 \\
 2e &= 7(1/70)^2 + 3,5(1/35)^2 \\
 2e &= 100/7 \quad \text{et } e = 7 \text{ A}
 \end{aligned}$$

La concordance est donc satisfaisante. L'interaction entre les franges diffuses du type a) et les domaines lenticulaires type d), s'interprète

quantitativement en admettant que ces derniers sont constitués par des zones d'effondrement de la surface cristalline présentant l'aspect de la fig. 81, la désorientation moyenne étant $\epsilon \approx 6 \text{ à } 7 \cdot 10^{-3} \text{ rad.}$ et la dépression maxima $e_1 \approx 6 \text{ ou } 7 \text{ A.}$

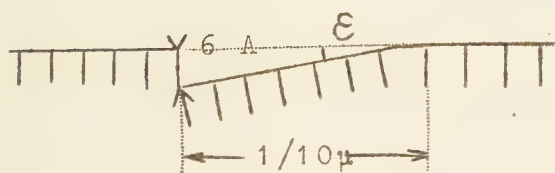


fig. 91

En se reportant à la maille MoO_3 , on constate que la dépression calculée $e_1 = 6 \text{ ou } 7 \text{ A}$, se produit suivant $b = 13,82 \text{ A}$. L'amplitude du glissement serait donc égale à $b/2$ environ, ce qui s'explique, par le fait que la maille contient 4 molécules réparties en deux groupes identiques également espacés selon b . La valeur $e_1 = b/2$ constitue d'ailleurs un minimum et l'on trouve aussi des exemples où le glissement

plus important, compte tenu de l'imprécision des mesures, correspond à un multiple simple de e_1 .

Il semble toutefois bien établi qu'au cours des premières secondes d'observation, des glissements se produisent à la surface des cristaux d'oxyde molybdique soumis pour la première fois au bombardement électronique. Il est vraisemblable que des dislocations préexistant dans le cristal sont à l'origine de ces glissements. On pourrait bien leur rechercher une cause chimique, départ d'oxygène par exemple, mais on comprendrait mal dans cette hypothèse la raison pour laquelle les franges d) apparaissent pendant les premières secondes d'observation pour disparaître aussitôt, à un moment où le cristal, peu absorbant, est encore loin d'avoir atteint la température nécessaire à la transformation de MoO_3 en MoO_2 . König (¹⁸) a soutenu ce point de vue mais il semble bien que ses conclusions aient été étayées par des expériences trop hâtives et insuffisamment précises. Grâce à des diagrammes électroniques de Debye-Scherrer, il a bien montré que MoO_3 se transforme en MoO_2 sous l'action du bombardement électronique, comme cela se produit par simple chauffage sous vide vers 400° (²¹). Il a également constaté qu'un bombardement prolongé désagrège les cristaux tabulaires de MoO_3 , comme le fait également le chauffage sous vide, tandis que progressivement les anneaux de diffraction de MoO_2 se substituent à ceux du MoO_3 initial. Les figures 94 et 95, pl. IX, montrent les effets de désagrégation très voisins, produits par les électrons (fig. 94) ou le simple chauffage sous vide (fig. 95).

Il lui a semblé d'autre part, que les franges d) en arêtes de poisson ou lames de parquet apparaissaient juste avant la désagrégation du cristal, comme si elles en constituaient le stade préliminaire. Nous pouvons affirmer que cette conception est erronée puisque les franges du type d) apparaissent et disparaissent pendant les premières secondes du bombardement d'un cristal vierge, tandis que sa désagrégation en éléments plus petits, ne se produit qu'à la fin, et seulement dans le cas d'un bombardement exceptionnellement intense. L'erreur de König provient vraisemblablement du fait que ses diagrammes de diffraction réalisés avec des spots électroniques trop gros, correspondent à une surface trop grande de ses préparations.

PLANCHE IX

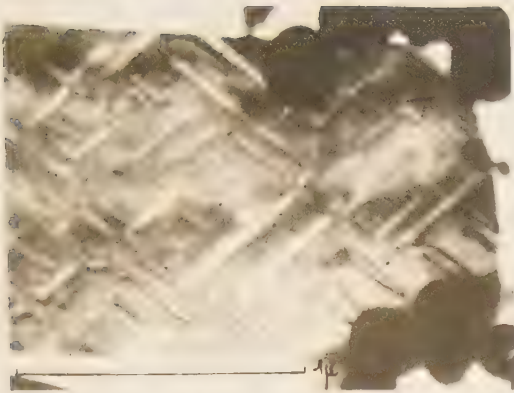


fig 81



fig 82

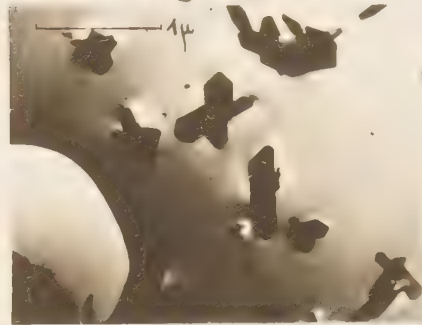


fig 92

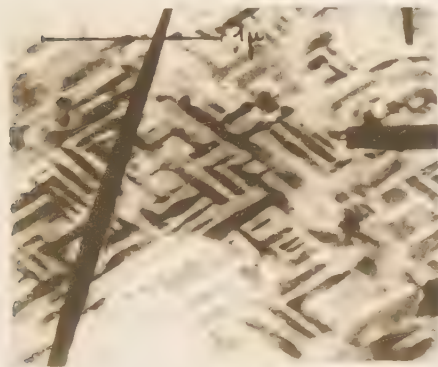


fig 83



fig 84



fig 93



fig 94



fig 95

Comme lui, nous avons vu, après un bombardement prolongé, les anneaux de MoO_2 se substituer à ceux de MoO_3 , mais nous avons constaté de plus que le MoO_2 formé, l'était aux dépens de billes ou d'amas importants, entièrement étrangers aux franges (coin inférieur gauche, fig. 92, pl. IX). Ces régions opaques de la préparation s'échauffent naturellement beaucoup plus que les cristaux minces, distillent et se condensent à nouveau sur les zones plus froides en donnant un effet d'ombrage très net (fig. 92). Le film microcristallin ainsi formé donne ensuite le diagramme caractéristique de MoO_2 mais la réduction de MoO_3 s'est vraisemblablement produite en phase gazeuse au cours de la distillation.

Grâce à notre matériel expérimental, nous avons sur König l'avantage de pouvoir faire des diagrammes de points sur n'importe quel cristal de notre choix présentant les franges d). Le résultat est d'une netteté absolue (fig. 11, pl. II). Le cristal, qu'il soit ou non couvert de franges, conserve le diagramme de points de MoO_3 . Mieux que cela, le diagramme de points donné par un cristal désagrégé en éléments plus petits (fig. 94) est encore celui de MoO_3 , où les spots sont à peine désorientés. Contrairement à l'opinion de König, la réduction de MoO_3 n'est donc qu'un phénomène accessoire sans liaison précise avec la formation des franges électroniques.

L'interprétation chimique écartée, il semble raisonnable de rechercher l'origine des domaines de glissements responsables des franges d) dans les imperfections du cristal. Comme nous le disions p. 36, ces glissements sont vraisemblablement provoqués par des dislocations du réseau cristallin. Le domaine glissé, serait, dans cette hypothèse, bordé en partie d'une chaîne de dislocations au voisinage de laquelle le réseau perturbé diffracterait les électrons d'une façon singulière. Sans développer ce point de vue plus complètement, nous admettrons que la perturbation du réseau autour d'une dislocation, s'étend à une trentaine de mailles (²²), ce qui, dans le cas présent avec $d \neq 4 \text{ \AA}$, conduirait à une largeur de la zone marginale de 120 Å.

Cette conception permettrait d'expliquer la présence autour des domaines lenticulaires (fig. 80, pl. VIII) de lignes tantôt plus claires, tantôt plus sombres, qui les limitent nettement pendant le premier stade de leur évolution. Les mesures faites sur les documents photographiques dont nous disposons, sont d'ailleurs en accord avec la valeur de 120 Å proposée plus haut.

Si ce point de vue est correct, les dislocations préexistant dans le cristal vierge seraient rendues mobiles par l'échauffement consécutif à l'établissement du bombardement électronique. En se déplaçant, elles donneraient naissance aux glissements observés, dont l'étendue croîtrait sous l'effet des tensions d'origine thermique. Enfin, le phénomène disparaîtrait lorsque les dislocations, se bloquant suivant certaines lignes ou s'évanouissant aux limites du cristal, un nouvel équilibre serait atteint. Ce schéma s'accorderait bien avec l'irréversibilité observée; malheureusement, le phénomène de diffraction est trop fugace et les images obtenues trop imprécises jusqu'ici, pour permettre dès maintenant, l'établissement d'une théorie vraiment satisfaisante. De nouveaux travaux expérimentaux sont nécessaires pour progresser dans ce sens.

- CHAPITRE V -

Franges d'interférences.

Au cours de nos recherches sur les franges à centre de symétrie, (chapitre III, p. 25) nous avons observé, sur les images de cristaux superposés d'iodure de plomb, un phénomène nouveau que nous avons ensuite reproduit avec l'oxyde molybdique. Il s'agit de bandes équidistantes, alternativement sombres et brillantes, dont l'aspect rappelle à s'y méprendre celui des franges optiques des lames minces (fig. 96, pl. X).

Un diagramme de diffraction obtenu avec les couples de cristaux présentant ces franges, montre que les réseaux des deux cristaux sont parallèles; ce parallélisme est également confirmé par l'examen des arêtes si les cristaux ont des contours bien définis comme c'est le cas pour l'oxyde molybdique (fig. 97, pl. X). Lorsque, au contraire, ce parallélisme des réseaux cristallins n'est pas respecté, on ne retrouve pas ce nouveau type de franges. Les conditions préalables à leur formation semblent donc être d'une part, la présence de deux feuillets cristallins superposés et de l'autre, le parallélisme de leurs réseaux.

On sait que, pour qu'il y ait interférences lumineuses, il faut superposer deux faisceaux cohérents se propageant dans la même direction (ou approximativement) et présentant entre eux une différence de marche. Un des moyens simples d'y parvenir consiste à utiliser la réflexion par des miroirs faisant entre eux un angle faible. Par analogie, nous avons pensé que la réflexion des ondes électroniques par les plans cristallins pouvait fournir les faisceaux cohérents nécessaires et conduire à leur superposition, à condition toutefois que les deux réseaux soient convenablement orientés.

Production de deux faisceaux cohérents.— Supposons deux cristaux A et B, distants de a et orientés de sorte que, sur une coupe (fig. 98), les traces des plans réticulaires homologues soient parallèles. Envisageons les plans d'équidistance d , normaux aux sections AA' et BB' et au plan de figure. L'incidence θ du faisceau incident par rapport à ces plans est telle que $2d \cdot \theta = n\lambda$; le faisceau est dévié par le cristal A de l'angle 2θ dans la direction PO. Il rencontre alors le cristal B et

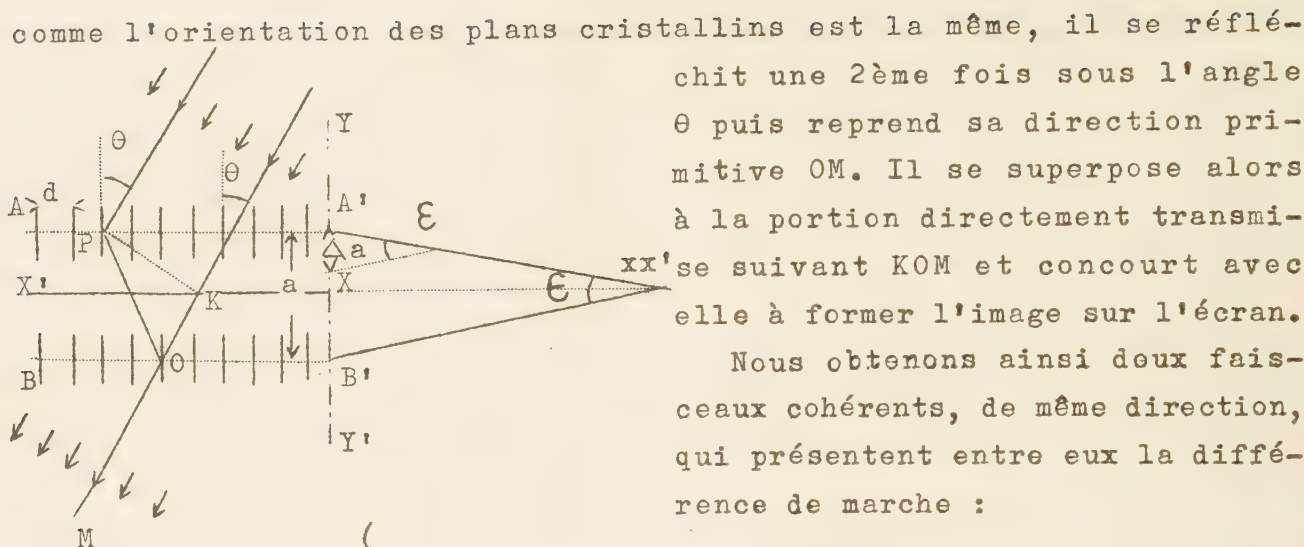


fig. 98

$$\delta = OP - OK = OP(1 - \cos 2\theta)$$

$$\delta = OP \cdot 2\theta^2$$

$$OP = \frac{a}{\cos \theta} \quad \text{comme } \theta \text{ est petit : } OP \approx a$$

nous avons donc $\delta = 2a\theta^2$

L'état d'interférence entre les deux faisceaux est donc fonction de la distance a . Les lignes $a = \text{cte}$ sont brillantes si $\delta = k\lambda$ et sombres si $\delta = (k + \frac{1}{2})\lambda$. Ce calcul montre la possibilité d'observer des franges électroniques d'égale épaisseur.

Franges équidistantes.— Les lignes d'égale épaisseur ont à priori un contour quelconque, mais dans le cas où les cristaux sont approximativement plans et forment un dièdre d'arête xx' et d'angle ϵ (fig. 98) elles sont parallèles à l'arête xx' . La distance a croît régulièrement avec la distance à cette arête. Il en résulte donc une succession de franges parallèles à xx' équidistantes et alternativement sombres et brillantes.

Pour confirmer cette interprétation, il conviendrait donc de mettre en évidence le dièdre formé par les cristaux. Or, une occasion nous est fournie par les photographies 96 et 99, pl. X qui, en plus des franges parallèles, montrent aussi les franges entrelacées dues à la présence dans l'un des cristaux de cavités lenticulaires.

Leur dissymétrie indique que le cristal qui les porte (A) est incliné par rapport au faisceau incident; en supposant que l'autre repose à plat sur le film de collodion, nous aboutissons à la formation d'un dièdre d'angle ϵ (fig. 100).

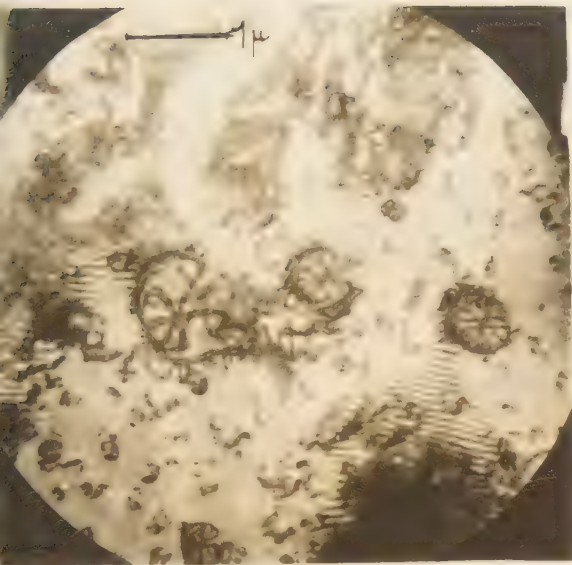


fig 96



fig 97

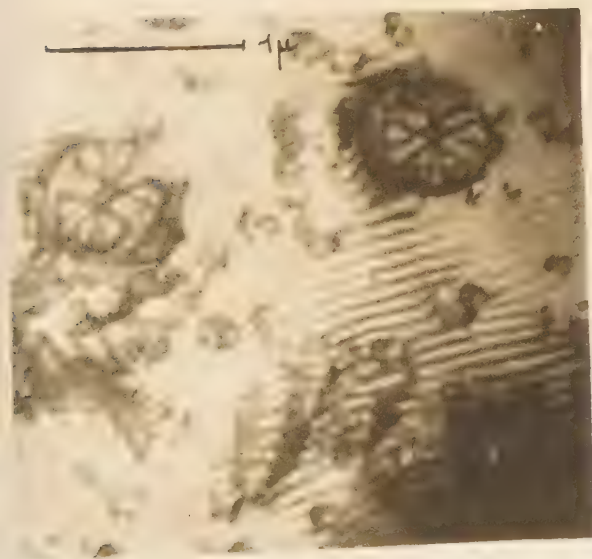


fig 99



fig 101

Franges d'interférences sur l'image de deux cristaux accolés, obtenues par la superposition de deux faisceaux électroniques cohérents.

Cette observation est très importante car elle nous permet, en utilisant la méthode décrite au chapitre III, p. 23, de calculer l'in-

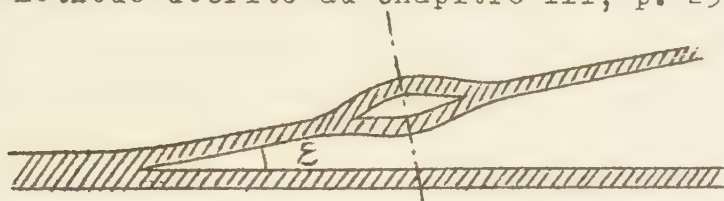


fig. 100

clinaison de la cavité lenticulaire et par suite l'angle ε du coin. Pour la figure 99, nous trouvons $\varepsilon = 3^\circ$ environ.

Si d'autre part, nous acceptons le mécanisme proposé plus haut pour la formation des franges parallèles équidistantes, il nous fournit également un moyen de calculer ε . Reportons nous donc à la même figure 99 où nous observons les franges parallèles d'équidistance $i = 800 \text{ \AA}$. D'une frange sombre à la suivante la variation d'épaisseur est $\Delta a = i\varepsilon$ et la différence de marche δ varie de λ .

$$\lambda = 2\Delta a\theta^2 \text{ ou } \lambda = 2i\varepsilon\theta^2, \text{ on en tire } \varepsilon = \frac{\lambda}{2i\theta^2}$$

Il plane évidemment une incertitude sur la valeur de l'angle de diffraction θ . Nous en connaissons néanmoins l'ordre de grandeur (chapitre III, p. 19). Si nous adoptons la valeur $\theta = 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ rad.}$ avec $\lambda = 0,055 \text{ \AA}$ et $i = 800 \text{ \AA}$, nous trouvons :

$$\varepsilon = \frac{0,055}{2 \cdot 800 \cdot (2,5)^2 \cdot 10^{-4}} = 5,5 \cdot 10^{-2} \text{ radian}$$

soit : $\varepsilon = 3^\circ$.

On retrouve donc pour l'angle du dièdre formé par les deux cristaux, la valeur calculée plus haut à partir des franges des cavités lenticulaires.

Le même calcul repris pour les franges parallèles, équidistantes de $i = 200 \text{ \AA}$, observées avec les cristaux d'oxyde molybdique (fig. 101 pl. X), donne $\varepsilon = 5,5^\circ$ pour $\theta = 3,5 \cdot 10^{-2} \text{ rad.}$

Il semble donc établi que les franges observées sont bien des franges d'interférences électroniques dues à la superposition de 2 faisceaux cohérents. Elles sont très semblables aux franges d'égale épaisseur de l'optique classique.

Comme on peut le remarquer sur les figures de la planche X, l'intensité des nouvelles franges varie beaucoup d'un point à l'autre de

l'image. Ce fait s'explique aisément. Il découle d'ailleurs d'un examen plus attentif du schéma 98.

Chaque fois qu'un pinceau électronique rencontre la surface cristalline, il se divise en deux parties : le pinceau transmis et le pinceau diffracté. Ce dernier possède évidemment l'intensité maxima lorsque la condition de Bragg $2d \cdot \sin \theta = n\lambda$ est rigoureusement remplie mais il subsiste encore pour les valeurs de θ voisines de la valeur idéale.

La théorie dynamique de l'électron permet de calculer l'intensité diffractée en fonction de l'angle d'incidence θ . La courbe de la figure 102 reproduit le résultat dans le cas d'un cristal d'épaisseur uniforme D pour un angle de diffraction θ . L'intensité diffractée, maximum pour l'angle θ , passe, de part et d'autre de cet angle, par des minima nuls et des maxima secondaires. Les minima sont obtenus pour :

$$\varepsilon_m = (\Delta\theta)_m = d/n \sqrt{(m/D)^2 - (1/D_0)^2}$$

m : numéro d'ordre des minima

n : ordre d'interférence

D : épaisseur du cristal

$$D_0 = \frac{\lambda E}{Vhkl}$$

λ : longueur d'onde

E : énergie totale de l'électron

$Vhkl$: son énergie potentielle dans une diffraction par les plans d'indices hkl

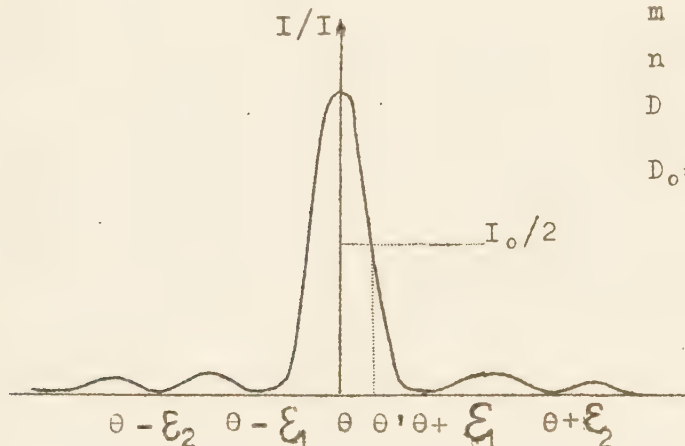


fig. 102

Sur le maximum central, l'intensité du faisceau diffracté passe donc de façon continue de la valeur maxima à la valeur nulle et l'on comprend qu'il existe une valeur θ' de l'incidence, voisine de $\theta = n\lambda/2d$

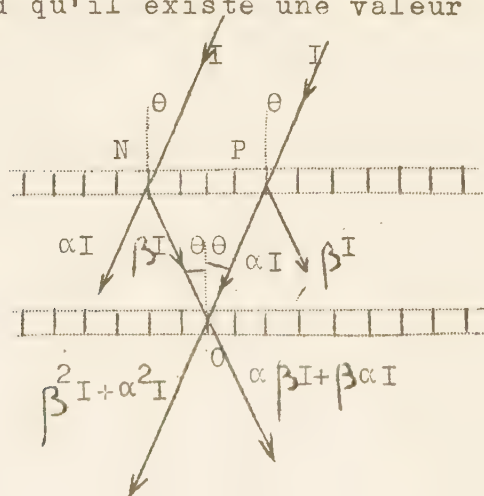


fig. 103

pour laquelle les intensités des faisceaux émergents diffractés et transmis soient égales. Si I représente l'intensité du faisceau incident, celles des faisceaux transmis et diffractés en N et P (fig. 103) sont respectivement αI et βI et deviennent $\alpha^2 I$ et $\beta^2 I$ après la seconde traversée en O . Les franges d'in-

terférences atteignent donc le contraste maximum pour $\alpha = \beta$ c'est-à-dire lorsque l'intensité incidente (abstraction faite de l'absorption) se partage également entre les deux faisceaux ($\alpha = \beta = \frac{1}{2}$.)

Si nous nous reportons maintenant à la courbe de la fig. 102, nous constatons qu' α varie très vite en fonction de θ dans la région K ($\alpha \neq \frac{1}{2}$) pour laquelle le contraste des franges est maximum. Comme nos cristaux ne sont jamais rigoureusement plans, l'angle θ varie d'un point à l'autre et l'on comprend que le contraste des franges subisse des variations locales très importantes.

Notre schéma 98 laisse prévoir qu'un phénomène d'interférence complémentaire, dû à la superposition des faisceaux $O\phi$, doit être observable en champ sombre. Nous n'avons pas encore eu l'occasion de le contrôler.

Signalons toutefois que Rang nous a récemment communiqué une photographie d'un cristal de mica obtenue en champ sombre sur laquelle apparaissent des franges d'interférences à l'infini données par la superposition des faisceaux cohérents diffractés par les deux faces d'une cavité lenticulaire (*).

Le phénomène que nous venons de décrire n'est donc pas exceptionnel; le fait qu'il soit resté aussi longtemps inobservé, s'explique sans doute par les difficultés qui s'opposent à la réalisation des conditions géométriques préalables et par la petitesse de l'interfrange, (quelques 100 Å) qui réclame pour son observation correcte un pouvoir séparateur élevé.

(*) O. Rang.- Travail en cours de publication.

- CONCLUSION -

Au chapitre I, nous avons proposé une classification des pseudo-structures observables sur les images électroniques des cristaux minces. Cette classification comprend 5 groupes que nous avons par la suite étudiés séparément, mais elle n'était rien d'autre qu'un moyen commode de travail.

Au terme de cette étude, nous constatons qu'en réalité les phénomènes groupés sous les rubriques a), b), c), et d) sont de simples cas particuliers d'un même effet : la réflexion sélective du faisceau électronique incident sur des plans cristallins convenablement orientés. La seule distinction qui subsiste entre les groupes réside dans la forme particulière prise par le cristal.:

- a) courbure générale,
- b) épaisseur graduellement décroissante,
- c) déformation en dôme, cuvette ou cavité lenticulaire,
- d) zones de glissement.

Pour le 5ème groupe e), au contraire, la différenciation reste plus nette. Nous avons en effet reconnu qu'il s'agit là, non plus de simples figures de diffraction, mais bien de véritables franges d'interférences électroniques, produites par la superposition de deux faisceaux cohérents distincts et présentant, d'un point à l'autre, une différence de phase variable.

- (1) M.V. Ardenne.- Zeit. f. Phys. 116, 1940, 736.
 - (2) J. Hillier et R.F. Baker.- Phys. Rev. 61, 1942, 722.
 - (3) H. Seemann.- Naturwiss. 31, 1943, 415.
 - (4) H. Böersch.- Zeit. f. Phys. 118, 1941-42, 706.
Zeit. f. Phys. 121, 1943, 746.
 - (5) R. Takagi.- J. Phys. Soc. Jap. 6, 1951, 204.
 - (6) R.D. Heidenreich.- Phys. Rev. 61, 1942, 722.
 - (7) E. Kinder.- Naturwiss. 31, 1943, 149.
 - (8) E. Pernoux.- J. Phys. Rad. 13, 1952, 368.
 - (9) R. Bernard et E. Pernoux.- Congrès Int. de M.E., Paris 1950
 - (10) R.D. Heidenreich et L. Sturkey.- J. Appl. Phys. 16, 1945, 97.
 - (11) R. Bernard et E. Pernoux.- Optik, 9, 1952, 1.
 - (12) O. Rang et H. Schluge.- Optik, 9, 1952, 463.
 - (13) O. Rang. Thèse, Darmstadt 1952
 - (14) B.V. Borries et E. Ruska.- Naturwiss. 28, 1940, 366.
 - (15) H. König.- 1er Congrès de la Sté Allemande de Microscopie elec-
tronique, Mosbach, 1949.
 - (16) R. Bernard et E. Pernoux.- Congrès International de Microscopie
électronique, Paris, 1950.
 - (17) Nora Wooster.- Zeit. Kristall. 80, 1951, 504.
 - (18) H. König.- Optik, 7, 1950, 261.
Zeit. f. Phys. 130, 1951, 483.
 - (19) G; Möllenstedt.- Phys. Verhand. 5, 1952, 114.
 - (20) O. Rang.- Phys. Verhand. 5, 1952, 115.
 - (21) O. Glemser et G. Lutz.- Kolloid Zeit. 119, 1952, 99.
 - (22) F. Seitz.- Advances in Physics, 1, 1952, 43.
-

NOTE APRES SOUTENANCE.

Nous venons de recevoir le travail de G. Möllenstedt : "Elektronenmikroskopische Sichtbarmachung von Hohlstellen in Einkristall-Lamellen", Optik, 10, (1953), 72-89. Comme nous le signalons dans le texte, cet auteur a observé et interprété les franges de cavités lenticulaires mais il a également fait des observations très voisines des nôtres sur les déformations en dômes ou cuvettes. Comme nous, il a reproduit artificiellement ces déformations en déposant le cristal mince de PbI_2 sur un collodion présentant des lacunes circulaires.

O. Rang nous a également communiqué son travail : "Formbestimmung dünner Einkristall-Lamellen mit Hilfe der durch Kristallgitter-Reflexe hervorgerufenen Scheinstrukturen", Optik, 10, (1953), 90-106. On y trouve le détail de ses belles expériences citées sous la référence (20), dans le court résumé des "Physikalische Verhandlungen", 5, (1952), 115.

=====

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté :

THEORIES MODERNES

SUR LA CROISSANCE DES CRISTAUX.

Vu et approuvé

Paris, le 13 avril 1953

Le Doyen de la Faculté des Sciences

A. CHATELET

Vu et permis d'imprimer

Le Recteur de l'Académie de Paris,

Le vice président du Conseil de

l'Université de Paris

A. CHATELET

